



# Acoustique des bulles : du milieu bulleux a la mousse liquide

Valentin Leroy

## ► To cite this version:

Valentin Leroy. Acoustique des bulles : du milieu bulleux a la mousse liquide. Physique [physics]. Université Paris Diderot, 2016. tel-01336283

**HAL Id: tel-01336283**

**<https://theses.hal.science/tel-01336283>**

Submitted on 22 Jun 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Paris 7 - Denis Diderot  
UFR de Physique

Habilitation à diriger des recherches

# Acoustique des bulles : du milieu bulleux à la mousse liquide

soutenue par

Valentin Leroy

le 20 juin 2016

devant le jury composé de

<b>Christophe Aristegui</b>	Rapporteur externe
<b>Christophe Coste</b>	Rapporteur interne
<b>Arnaud Derode</b>	Examineur
<b>Stephan Fauve</b>	Examineur
<b>Reinhard Höhler</b>	Rapporteur externe
<b>Geoffroy Lerosey</b>	Examineur
<b>Valérie Vidal</b>	Examinatrice



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Préambule</b>	<b>7</b>
1.1 À propos de la notion de milieu effectif . . . . .	7
1.2 Modèles de milieu effectif . . . . .	11
1.3 Diffusion acoustique par une bulle . . . . .	16
<b>2 Milieux bulleux</b>	<b>21</b>
2.1 Bulles dans un fluide à seuil [Article 1] . . . . .	25
2.2 Bulles dans une pâte à pain [Article 2] . . . . .	38
2.3 Bulles dans un élastomère [Article 3] . . . . .	53
2.4 Perspectives . . . . .	68
<b>3 Plan de bulles</b>	<b>71</b>
3.1 Transmission à travers un plan de bulles [Article 4] . . . . .	71
3.2 Cristal de bulles : Bragg et hybridation [Articles 5 et 6] . . . . .	84
3.3 Super absorption [Article 7] . . . . .	91
3.4 Perspectives . . . . .	99
<b>4 Mousses liquides</b>	<b>101</b>
4.1 Régime basses fréquences [Article 8] . . . . .	108
4.2 Technique de mesure à hautes fréquences [Article 9] . . . . .	125
4.3 Résonance acoustique dans les mousses liquides [Article 10] . . . . .	136
4.4 Perspectives . . . . .	156
<b>Conclusion</b>	<b>159</b>
<b>A Milieu effectif unidimensionnel</b>	<b>161</b>
<b>B Diffusion acoustique par une inclusion sphérique</b>	<b>166</b>
<b>C Waterman et Truell</b>	<b>178</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>184</b>





# Introduction

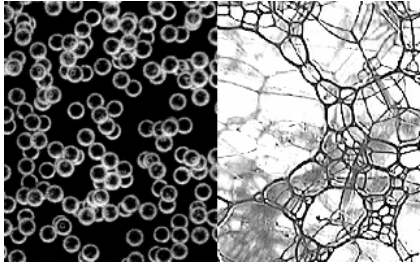
Les milieux bulleux ont des propriétés acoustiques surprenantes. Par exemple, il suffit d'une infime quantité de bulles d'air dans de l'eau pour que la vitesse effective du son dans le milieu soit grandement modifiée : ainsi, avec une fraction volumique d'air de 0,4%, la vitesse est de l'ordre de 200 m/s, c'est à dire non seulement inférieure à la vitesse du son dans l'eau (1500 m/s) mais également plus basse que la vitesse du son dans l'air (340 m/s). On a donc affaire à un milieu dont les propriétés sont très différentes de celles de ses constituants ! Chacun peut d'ailleurs quotidiennement apprécier l'ampleur du phénomène grâce à **l'effet chocolat chaud** [1].

Mais les bulles ont une autre particularité acoustique marquante : leur résonance basse fréquence (la résonance de **Minnaert** [2]). D'ordinaire, une onde est très peu diffusée par un objet petit par rapport à sa longueur d'onde (diffusion dite de Rayleigh). Pour les bulles et les ondes acoustiques, l'histoire est différente : une bulle d'air de 1 mm de rayon dans de l'eau interagit de manière résonnante avec une onde acoustique de fréquence 3 kHz, soit une longueur d'onde de 50 cm, c'est-à-dire 500 fois la taille de la bulle. Dans ces circonstances, on comprend que la présence de bulles dans un liquide affecte énormément la propagation acoustique : à résonance, non seulement chaque bulle engendre un champ acoustique important, mais comme de nombreuses bulles sont potentiellement excitées en phase, leurs contributions sont constructives et constituent donc une part majeure du champ acoustique total. Pour faire simple : les bulles font beaucoup de bruit (résonance), et elles le font collectivement (grande longueur d'onde).

Ce manuscrit propose, au travers de 8 articles et 2 actes de congrès, un tour d'horizon de mes recherches expérimentales sur l'acoustique des bulles depuis le 1<sup>er</sup> octobre 2005. On verra, au fil des pages, se dessiner 3 motivations principales à l'étude des milieux bulleux :

- D'un point de vue fondamental, le milieu bulleux est un système modèle pour la propagation des ondes en milieu complexe. Il permet en particulier d'aborder, dans un cadre formel simple, les problèmes de propagation d'ondes en régime de forte diffusion multiple.
- Les bulles interviennent dans de nombreuses applications pratiques. Que l'on cherche à les éliminer (industrie verrière) ou à les favoriser (boulangerie), être capable de les détecter et de les caractériser (taille, concentration) est un enjeu important. Comme les bulles ont une signature acoustique forte, les méthodes ultrasonores constituent un outil de choix pour déterminer, par exemple, la distribution en taille de bulles dans un milieu visco-élastique opaque.

- Les propriétés acoustiques extraordinaires des milieux bulleux peuvent être mises à profit pour créer de nouveaux matériaux acoustiques. Un atout majeur pour cette recherche est la persistance de la résonance basse fréquence des bulles lorsqu'elles ne sont plus dans un liquide, mais dans un milieu élastique mou (i.e., avec un module élastique relativement faible, inférieur à 10 MPa). On peut donc obtenir des matériaux bulleux stables ayant des propriétés acoustiques inédites.



Plutôt qu'un découpage selon ces 3 motivations, on a préféré une organisation par type de milieu. Le chapitre 2 abordera spécifiquement l'acoustique des milieux bulleux. Le chapitre 3 montrera ce que la géométrie particulière du plan de bulles peut nous apprendre sur la diffusion multiple. Et le chapitre 4 explorera le cas du milieu bulleux très concentré : la mousse liquide. Chacun de ces 3 chapitres contient une intro-

duction générale, suivie par 3 ou 4 articles. Les articles sont en général précédés d'un résumé des principaux résultats qu'ils contiennent, de sorte que leur lecture n'est en principe pas strictement nécessaire à la compréhension de l'ensemble du manuscrit. Il est toutefois souvent fait référence aux figures des articles. On ne s'épargnera donc pas la peine de devoir naviguer d'une page à l'autre (pour la version électronique, des liens hypertextes permettent en principe une lecture plus fluide). En préambule aux 3 chapitres sur mes recherches, on trouve un chapitre d'introduction générale permettant de donner quelques outils qui serviront par la suite, notamment sur la notion de milieu effectif et sur la dynamique d'une bulle.

Le dessin est chez moi un bon moyen de lutter contre le syndrome de la page blanche : avec un petit schéma, le texte vient plus facilement. Les blocages étant fréquents, on trouvera de nombreuses figures dans ce manuscrit. J'ai emprunté l'idée de faire des aquarelles à Simon Raffy, mais les miennes ne m'ont pas taché les doigts puisqu'elles ont été réalisées sur tablette (Paper by FiftyThree).

# Chapitre 1

## Préambulle

*Before I speak, I have something  
important to say.*

---

G. Marx

Ce premier chapitre a pour but d'introduire quelques notions et équations qui seront utiles tout au long du manuscrit. Pour rendre la lecture plus fluide, certains détails techniques seront traités en annexe.

### 1.1 À propos de la notion de milieu effectif

Dans un milieu homogène, une onde se propage “balistiquement”, avec des fronts d'onde réguliers, comme illustré sur la figure 1.1 de gauche. Pour une onde de compression dans un fluide, par exemple, connaître la masse volumique  $\rho_0$  et la compressibilité  $\chi_0$  du fluide suffit à déterminer la vitesse de propagation de l'onde  $v = 1/\sqrt{\rho_0\chi_0}$  et, pour une fréquence donnée, la longueur d'onde.

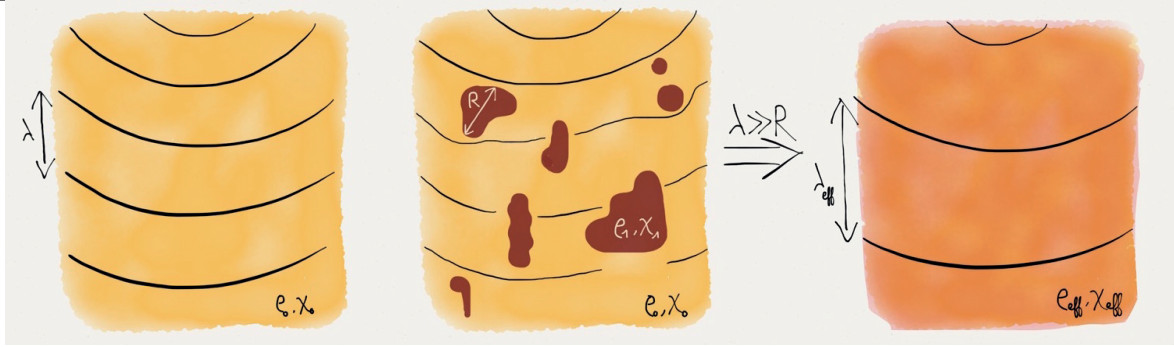


FIGURE 1.1 – Dans un milieu homogène (à gauche), une onde se propage avec des fronts d’onde réguliers et une longueur d’onde  $\lambda$ . En général, la présence d’hétérogénéités (au milieu) déforme les fronts d’onde, rendant le système d’ondes a priori complexe. Cependant, à la limite des grandes longueurs d’onde (à droite), on montre que la propagation se fait comme dans un milieu homogène équivalent, avec une longueur d’onde effective, qui dépend de la composition et de la structure du milieu hétérogène.

Si le milieu est hétérogène, du fait par exemple de la présence d’inclusions d’un autre matériau, comme sur le dessin central de la figure 1.1, les fronts d’onde vont se déformer et un système complexe d’ondes va se développer. A priori, le champ va alors dépendre de la position exacte des inclusions qui vont agir comme autant de diffuseurs répartissant l’énergie dans toutes les directions. À l’approximation de l’acoustique géométrique, pour une longueur d’onde petite devant la taille des inclusions, on peut avoir l’image de rayons acoustiques subissant des déflexions pour chaque inclusion rencontrée, provoquant ainsi un véritable “mélange” de rayons dans toutes les directions au lieu de la trajectoire rectiligne obtenue dans un milieu homogène. Mais c’est à l’autre régime extrême que l’on va s’intéresser ici, celui des grandes longueurs d’onde. Lorsque la longueur d’onde est grande devant la taille typique des hétérogénéités, ces dernières ne perturbent en général que très peu la propagation de l’onde. On peut montrer que l’onde se propage alors comme si elle était dans un milieu homogène, une sorte de “milieu moyen” entre le matériau 0 (en jaune sur la figure) et le matériau 1 (le brun). On est donc ramené à une situation particulièrement simple : une propagation “ballistique”, mais avec une masse volumique  $\rho_{\text{eff}}$  et une compressibilité effective  $\chi_{\text{eff}}$ . Ces paramètres effectifs vont bien entendu dépendre des matériaux et de la structure du milieu (quantité et tailles des inclusions, et ordre éventuel de leur disposition spatiale). Notons que la longueur d’onde étant inversement proportionnelle à la fréquence, c’est à basse fréquence que l’approximation de milieu effectif est valable. Tout au long de ce manuscrit, on utilisera fréquemment l’expression “basses fréquences” avec le sens de “suffisamment basses fréquences pour que la longueur d’onde soit grande comparée à la taille typique des inhomogénéités du milieu”.

### 1.1.1 Spectroscopie

La présence d’inclusions plus petites que la longueur d’onde se manifeste souvent principalement par une atténuation accrue de l’onde lors de sa propagation. Le milieu effectif est alors

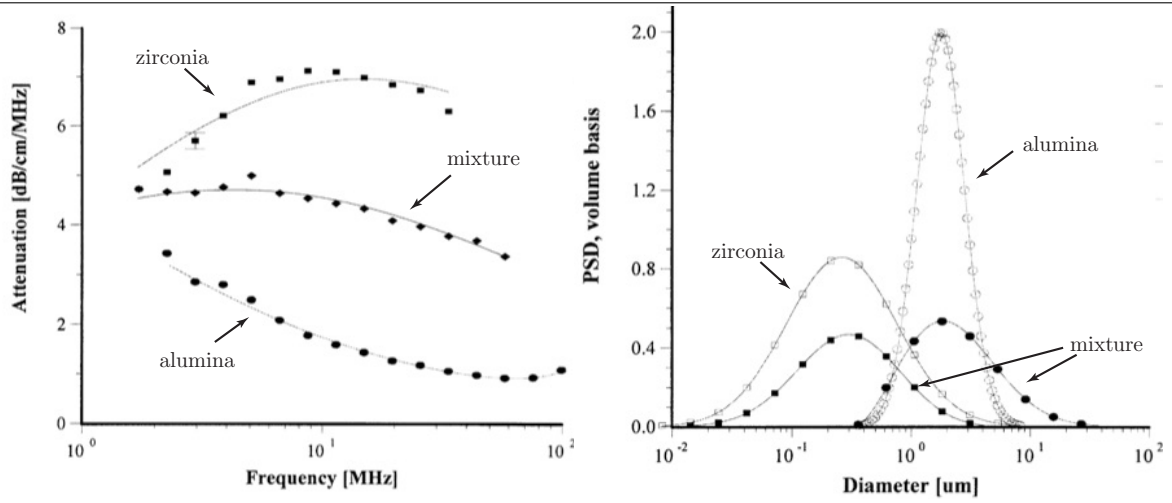


FIGURE 1.2 – Un exemple de spectroscopie acoustique. Mesurer l’atténuation acoustique en fonction de la fréquence (à gauche) permet de déterminer la distribution en taille des particules (à droite). Trois suspensions, avec une fraction volumique de particules de 5% à chaque fois, sont présentées : des particules de dioxyde de zirconium (zirconia), des particules d’oxyde d’aluminium (alumina), ainsi qu’un mélange des deux à proportion égale (mixture). Figures extraites de [3] (Fig. 13).

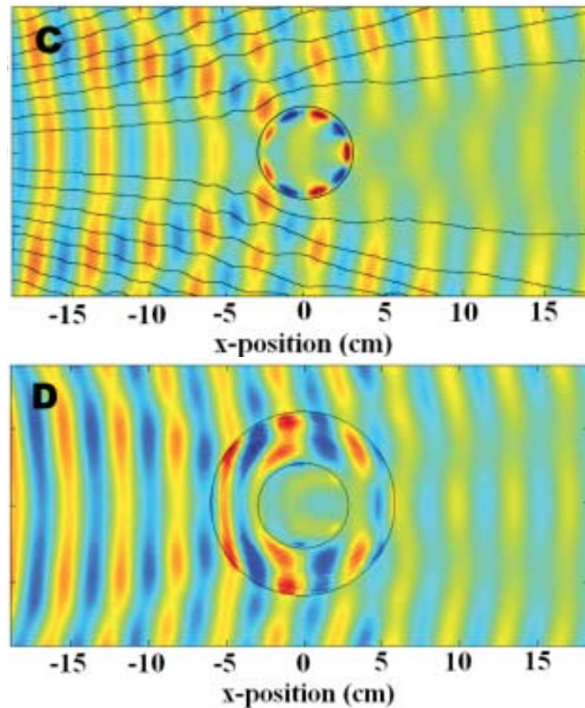
très proche du milieu homogène sans inclusion, mais avec une atténuation plus importante. De nombreuses techniques de **spectroscopie** reposent sur la mesure de cet excès d’atténuation. On peut ainsi déterminer la taille de gouttes dans une émulsion, ou la taille de particules dans une suspension [3, 4], comme illustré sur la figure 1.2. Le concept de milieu effectif est donc intéressant pour des applications de sondes acoustiques : la mesure des propriétés acoustiques effectives d’un milieu complexe permet d’en déduire des informations sur sa composition.

### 1.1.2 Métamatériaux

On peut également faire l’opération inverse : plutôt que de caractériser un milieu hétérogène grâce aux ondes, on peut se demander comment il faut fabriquer le milieu hétérogène pour qu’il transporte les ondes comme on le désire. On peut par exemple avoir besoin d’un milieu dans lequel le son se propage à 500 m/s. Un milieu homogène possédant les bonnes compressibilité et masse volumique correspondant à cette vitesse n’est pas facile à trouver. Mais en mélangeant plusieurs constituants, on peut facilement obtenir une telle vitesse effective. On entre là dans le domaine de ce que l’on appelle les **métamatériaux** : des matériaux structurés à l’échelle sub-longueur d’onde qui possèdent des propriétés effectives introuvables dans les matériaux usuels. C’est un champ de recherche en pleine activité ces dernières années, et il n’est pas limité aux ondes acoustiques ; toutes les formes d’ondes sont a priori concernées. L’exemple d’un matériau avec une vitesse du son de 500 m/s que l’on a choisi précédemment est en fait assez terne par rapport à ce qui se développe en ce moment. On peut aller beaucoup plus loin. On peut structurer le matériau de manière à avoir des propriétés qui varient dans l’espace, ce qui permet d’obtenir par exemple des gradients d’indice pour dévier les ondes. Dans cette veine, de nombreux travaux se sont penchés sur la faisabilité d’une cape d’invisibilité. Le

développement de l'optique transformationnelle a en effet permis de déterminer quel champ d'indice il fallait dessiner pour que les ondes contournent un volume de l'espace puis reforment un front non déformé derrière le volume en question, rendant le dit volume invisible. Il reste ensuite à créer le métamatériau ayant le champ d'indice désiré. La figure 1.3 présente une des plus belles réussites expérimentales dans ce domaine, pour des micro-ondes [5].

FIGURE 1.3 – Un exemple de cape d'invisibilité pour des micro-ondes (8-12 GHz). L'expérience consiste dans un premier temps à envoyer une onde sur un cylindre de cuivre (figure du haut). On constate que les fronts d'onde sont déformés par la présence du cylindre, avec notamment l'apparition d'une ombre derrière celui-ci : un observateur derrière le cylindre ne verra plus la source d'onde. Dans un second temps (figure du bas), le cylindre est entouré d'une "cape", qui consiste en un anneau avec une structure sub-longueur d'onde qui oblige l'onde à contourner le cylindre et fait disparaître l'ombre : un observateur placé derrière le cylindre reçoit l'énergie de la source presque comme si le cylindre n'était pas là (figures extraites de [5]).



Une autre application des méta-matériaux est le domaine des matériaux doublement négatifs. Rien ne s'oppose en effet à ce que la micro-structure soit telle que les paramètres du matériaux deviennent négatifs, pour une plage de fréquences donnée. Par exemple, on verra que les milieux bulleux présentent une compressibilité négative sur une très large gamme de fréquences : ils se dilatent lorsqu'on les comprime ! En 1968, Veselago a prédit que dans des matériaux dont à la fois la compressibilité et la masse volumique étaient négatives,<sup>1</sup> on devait avoir propagation avec une vitesse de phase négative. Cela donne lieu à des milieux pour lesquels la loi de Snell-Descartes conduit à un angle de réfraction négatif [6]. Pendry est allé plus loin en 2000 [7] en montrant qu'un autre phénomène intervenait dans ces milieux doublement négatifs : l'évanescence y change également de signe, et les ondes évanescentes sont donc amplifiées ! Comme l'information que l'on perd à cause des ondes évanescentes est à l'origine de la limite de résolution d'un appareil d'imagerie, on conçoit que cette découverte a apporté un regain d'intérêt pour les matériaux doublement négatifs. La quête pour une lentille parfaite est en cours, y compris en acoustique [8].

1. Historiquement, les effets ont plutôt été considérés pour l'électromagnétisme, auquel cas la permittivité joue le même rôle que la compressibilité, et la perméabilité celui de la masse volumique.



## 1.2 Modèles de milieu effectif

Comment calculer  $\rho_{\text{eff}}$  et  $\chi_{\text{eff}}$ ? On a dit plus haut que cela dépendait de la nature des matériaux et de la structure du milieu, mais reste à donner une forme plus quantitative à cette affirmation.

### 1.2.1 Le modèle de Wood

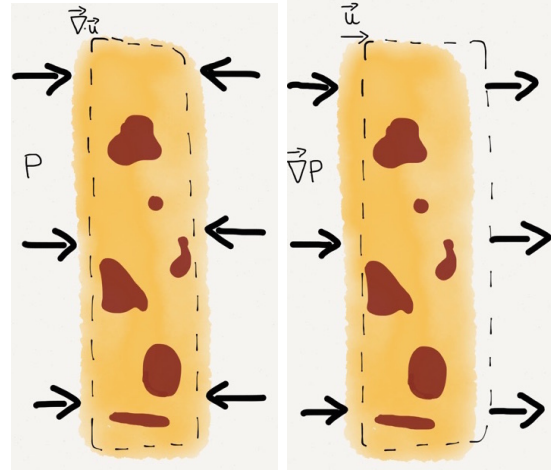
Commençons par une première approche simple qui donne une bonne image physique de ce qu'il se passe. Il s'agit de revenir aux deux équations dans lesquelles interviennent la masse volumique et la compressibilité :

$$\text{div}(\vec{u}) = -\chi P, \quad (1.1a)$$

$$\rho \frac{\partial^2 \vec{u}}{\partial t^2} = -\vec{\text{grad}} P, \quad (1.1b)$$

où  $\vec{u}$  désigne le déplacement et  $P$  la pression. C'est à partir de ces deux équations que l'on retrouve, dans les fluides, l'équation de propagation des ondes acoustiques  $\partial^2 P / \partial t^2 - v^2 \Delta P = 0$ , avec la vitesse de phase  $v = 1/\sqrt{\rho\chi}$ . La figure 1.4 propose deux schémas permettant de visualiser ces équations pour une tranche (sub-longueur d'onde) de milieu.

FIGURE 1.4 – **À Gauche**, un schéma visuel de l'équation (1.1a) : la compressibilité correspond à la propension du milieu à changer de volume quand il est soumis à une variation de pression. **À droite**, un schéma visuel de l'équation (1.1b) : la masse volumique correspond à la propension du milieu à se déplacer quand il est soumis à un gradient de pression.



D'après l'équation (1.1a) on détermine donc la compressibilité d'un milieu en mesurant sa variation de volume quand on le soumet à une surpression. On retrouve la définition de la compressibilité  $\chi = -(1/V)\partial V/\partial P$ ,  $V$  désignant le volume. Si on note  $V_0$  et  $V_1$  les volumes occupés par les phases 0 et 1 ( $V = V_0 + V_1$ ), on trouve facilement que la compressibilité effective va s'écrire :

$$\chi_{\text{eff}} = \frac{-1}{V} \frac{\partial V_0}{\partial P} + \frac{-1}{V} \frac{\partial V_1}{\partial P} = \frac{V_0}{V} \chi_0 + \frac{V_1}{V} \chi_1 = (1 - \Phi) \chi_0 + \Phi \chi_1, \quad (1.2)$$

en notant  $\Phi$  la fraction volumique du milieu 1.

On peut faire le même raisonnement pour la masse volumique. Si on suppose que toutes les parties de la tranche de matériau ont le même déplacement, on trouve que

$$\rho_{\text{eff}} = (1 - \Phi) \rho_0 + \Phi \rho_1. \quad (1.3)$$



Les deux équations (1.2) et (1.3) donnent le résultat, assez intuitif, que les propriétés du milieu effectif sont données par la moyenne des propriétés de ses constituants. C'est ce qu'on appelle la loi de Wood, ou loi des mélanges (*mixture law*). Avant d'aborder des modèles plus sophistiqués, on peut légitimement se demander si c'est vraiment nécessaire : la loi de Wood paraît raisonnable, et sa démonstration convaincante. Elle est d'ailleurs très souvent vérifiée expérimentalement. Mais elle contient deux hypothèses fortes : la réponse à la variation de pression est purement élastique, et la réponse au gradient de pression est purement inertielle. On verra que ce n'est pas toujours vrai. Par exemple, lorsque les inclusions sont des bulles de gaz, leur réponse à la compression est en fait dominée par l'inertie pour certaines fréquences. Il faut donc avoir une idée un peu plus précise de la façon dont les inclusions répondent au champ de pression, et des modèles plus complets que celui de Wood sont nécessaires.

### 1.2.2 Les modèles de diffusion

Il existe dans la littérature deux grandes familles de modèles pour décrire la propagation d'une onde dans un milieu complexe : les théories de phases couplées (*coupled phase theories*) et les théories de diffusion (*scattering theories*). Les premières reposent sur une approche hydrodynamique des systèmes diphasiques, tandis que les secondes privilégient une approche acoustique, qui décrit les inclusions comme des diffuseurs. Les deux approches ont leurs avantages et leurs inconvénients selon les effets que l'on veut aborder (voir par exemple [9, 10]). Selon sa sensibilité, chacun privilégie l'une ou l'autre parce qu'elle lui paraît plus simple et plus élégante. On fera ici le choix de l'approche acoustique. Dans cette famille des modèles de diffusion, il existe une grande diversité de modèles et on ne les abordera pas tous ici. Le lecteur intéressé se reportera avec profit au travail de synthèse dans [11]. On abordera dans le chapitre 2 quelques modèles plus élaborés, mais on va ici surtout s'attacher à présenter des calculs les plus simples possibles permettant d'aller au delà du modèle de Wood.

Une première idée de système simple est représentée sur la figure 1.5. Une succession de couches fines d'un matériau 1 séparées de couches, également fines, d'un matériau 0 constitue un système unidimensionnel dont il est assez facile de calculer les coefficients de transmission et de réflexion. On peut alors étudier les conditions dans lesquelles ce système est équivalent à un milieu homogène effectif. En fait, malgré sa géométrie simple, ce problème donne lieu à des calculs assez longs, que l'on détaille dans l'annexe A.

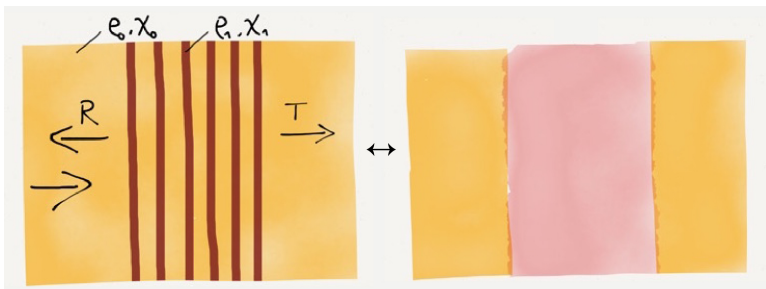


FIGURE 1.5 – Quel est le milieu effectif équivalent d'une succession de couches fines de matériau 1 dans un matériau 0 ? La réponse n'est pas aussi simple qu'il y paraît (voir annexe A).

Nous allons plutôt nous pencher ici sur le cas d'un milieu comportant des inclusions

sphériques, comme dans la figure 1.6. Dans le cas général, le champ diffusé par une inclusion prend une forme compliquée, avec une dépendance angulaire non triviale. Cependant, à grande longueur d'onde, chaque diffuseur ressent principalement une pression homogène et c'est l'ordre de diffusion monopolaire qui domine<sup>2</sup> (voir Annexe B). Supposons donc que chaque inclusion se comporte comme un diffuseur isotrope : excitée par une pression complexe  $p$ , elle engendre un champ de pression  $pf\exp(ik_0r)/r$  à une distance  $r$ , avec une fonction de diffusion  $f$  qui dépend a priori de la fréquence et du diffuseur. On se trouve alors dans la situation qu'a analysée Foldy [12] dans son article historique sur la diffusion multiple. Toutefois, plutôt que de reprendre les calculs de Foldy, on propose ici une approche plus simple, bien que mathématiquement moins rigoureuse. Considérons, comme illustré dans la figure 1.6, un milieu comportant  $n$  diffuseurs par unité de volume s'étendant de  $z = 0$  à  $+\infty$ . Une onde plane  $p_0\exp(ik_0z)$  arrive de  $-\infty$  et on désire calculer comment elle se propage dans le milieu. Le diffuseur  $i$ , en  $z_i$ , est sujet non seulement au champ incident mais également à la somme des champs engendrés par tous les autres diffuseurs. On obtient alors un champ total

$$p_i^{\text{tot}} = p_0 e^{ik_0 z_i} + \sum_{n \neq i} p_n^{\text{tot}} f_n \frac{e^{ik_0 d_{in}}}{d_{in}}, \quad (1.4)$$

où  $d_{in}$  est la distance entre les diffuseurs  $i$  et  $n$ , et  $f_n$  la fonction de diffusion du diffuseur  $n$ . L'équation (1.4) est exacte du point de vue de la diffusion multiple : tous les ordres de diffusion sont inclus. Remarquons que cette équation est sous forme implicite puisque les  $p_i^{\text{tot}}$  que l'on cherche à déterminer apparaissent à gauche et à droite du signe égal. Dans le cas d'un nombre fini de diffuseurs, la résoudre se ramène à un simple exercice d'inversion de matrice. Mais pour un nombre infini de diffuseurs, déterminer  $p_i^{\text{tot}}$  n'est pas facile, du fait des couplages longue portée. En effet, le champ de pression généré par chaque diffuseur est en  $1/r$ , ce qui signifie qu'il y a une interaction longue portée entre les diffuseurs, et aucun couple  $(i, n)$  ne peut être a priori négligé dans la somme.

La solution que l'on propose ici s'inspire du calcul classique de la chaîne de masses et de ressorts, souvent utilisée pour introduire les ondes mécaniques en premier cycle universitaire. Une grande différence est que les couplages ne se limitent pas ici aux plus proches voisins. Étant donnée la symétrie du problème, tous les diffuseurs à la même profondeur  $z$  voient en moyenne le même champ de pression, et on cherche une solution de la forme  $p_i^{\text{tot}} = p \times \exp(ikz_i)$ , avec une amplitude  $p$  et un nombre d'onde  $k$  à déterminer. Pour rendre le calcul plus simple, et sans véritable perte de généralité, on va supposer que les inclusions sont toutes identiques :  $f_i = f$ . On obtient donc l'équation

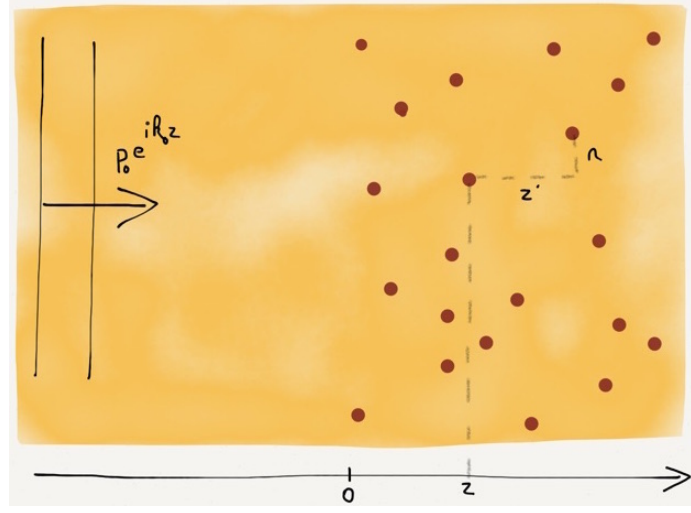
$$pe^{ikz_i} = p_0 e^{ik_0 z_i} + pf \sum_{n \neq i} e^{ikz_n} \frac{e^{ik_0 d_{in}}}{d_{in}}. \quad (1.5)$$

Une ultime simplification est de passer à la limite continue : la somme discrète, qui dépend a priori de la position exacte de chacun des diffuseurs, va être évaluée en considérant qu'on a

---

2. Pour les bulles, c'est effectivement la diffusion monopolaire qui domine largement à basse fréquence, mais pour la plupart des diffuseurs, l'ordre dipolaire est quasiment du même ordre de grandeur (voir figure B.2). Le calcul que l'on présente ici n'est donc pas suffisant dans le cas général. Il permet toutefois de présenter la démarche simplement. Et le calcul détaillé, en Annexe C, suit la même procédure.

FIGURE 1.6 – Une onde plane arrive sur un demi espace peuplé de diffuseurs monopolaires. Pour déterminer les coefficients de transmission et de réflexion, on s'intéresse au champ total que subit une inclusion située à la profondeur  $z$ .



une répartition homogène de diffuseurs, avec une densité volumique  $n$ . C'est une étape assez délicate à justifier proprement, et c'est sans doute le prix à payer pour notre calcul simple. Grossièrement, il s'agit de l'équivalent de la moyenne sur les réalisations du désordre que l'on trouve dans les calculs de Foldy et de ses successeurs. Sommer sur tous les diffuseurs revient donc à intégrer sur tout le demi-espace positif, ce qui donne (en coordonnées cylindriques, comme illustré sur la figure 1.6)

$$pe^{ikz} = p_0 e^{ik_0 z} + pf \int_{-z}^{\infty} dz' \int_0^{\infty} 2\pi n r dr e^{ik(z+z')} \frac{e^{ik_0 \sqrt{z'^2 + r^2}}}{\sqrt{z'^2 + r^2}}. \quad (1.6)$$

En intégrant d'abord sur  $r$  puis sur  $z'$ , on obtient

$$\begin{aligned} pe^{ikz} &= p_0 e^{ik_0 z} + pe^{ikz} \int_{-z}^{\infty} dz' \frac{2i\pi n f}{k_0} e^{i(kz' + k_0|z'|)} \\ &= p_0 e^{ik_0 z} + pe^{ikz} \frac{2\pi n f}{k_0} \left[ \frac{1 - e^{-i(k-k_0)z}}{k - k_0} - \frac{1}{k + k_0} \right], \end{aligned} \quad (1.7)$$

équation qui peut se mettre sous la forme simple

$$p \left( \frac{4\pi n f}{k^2 - k_0^2} - 1 \right) + \left( p_0 - p \frac{2\pi n f}{k_0(k - k_0)} \right) e^{i(k_0 - k)z} = 0. \quad (1.8)$$

Puisque cette égalité doit être vraie pour tout  $z$ , cela impose que le terme constant et le préfacteur devant le terme qui dépend de  $z$  soient tous deux nuls. On obtient alors

$$k^2 = k_0^2 + 4\pi n f, \quad (1.9a)$$

$$p = \frac{2k_0}{k + k_0} p_0. \quad (1.9b)$$

L'équation (1.9a) détermine donc le nombre d'onde effectif avec lequel l'onde plane se propage dans le milieu hétérogène. Il suffit de connaître le nombre de diffuseurs par unité de volume,  $n$ , et la fonction de diffusion d'un diffuseur unique  $f$ . Quant à l'équation (1.9b), elle donne le coefficient de transmission. Notons que comme  $k = \rho\omega/Z$ , on retrouve, en supposant que la

masse volumique du milieu effectif n'est pas affectée par la présence des diffuseurs monopolaires, le coefficient de transmission classique  $2Z/(Z + Z_0)$  pour une onde de pression passant d'un milieu d'impédance  $Z_0$  à un milieu d'impédance  $Z$ . La description en terme de milieu effectif est donc cohérente vis à vis de la notion de rupture d'impédance.<sup>3</sup> On peut aussi s'intéresser au champ rayonné par tous les diffuseurs dans le demi-espace gauche :

$$\begin{aligned} p(z < 0) &= p e^{-ikz} \int_0^\infty dz' \frac{2i\pi n f}{k_0} e^{i(k+k_0)z'} \\ &= \frac{k_0 - k}{k_0 + k} p_0 e^{-ikz}, \end{aligned} \quad (1.10)$$

et on retrouve donc bien le coefficient de réflexion classique  $(Z - Z_0)/(Z + Z_0)$ . Le calcul se généralise facilement à une tranche d'épaisseur finie, auquel cas on cherche une solution sous la forme  $A \exp(ikz) + B \exp(-ikz)$ . On trouve alors la même relation de dispersion et des conditions sur  $A$  et  $B$  permettent de retrouver les coefficients de réflexion et de transmission.

La formule (1.9a) correspond à celle établie par Foldy, et elle est très proche de celle que donne le modèle connu sous l'acronyme ISA, pour *Independent Scattering Approximation* (approximation des diffusions indépendantes). L'ISA va plus loin que Foldy en ce sens que les diffuseurs n'y sont pas forcément purement monopolaires, avec pour conséquence que  $f$  ne désigne alors pas la fonction de diffusion isotrope, mais la fonction de diffusion vers l'avant. L'ISA reste toutefois un modèle de milieu dilué, au premier ordre en  $n$  (le nombre de diffuseurs par unité de volume).

Un modèle plus complet est dû à Waterman et Truell [15]. Le résultat majeur de leur article réside dans leur équation (3.25) que l'on peut écrire sous la forme (voir Annexe C)

$$k^2 = k_0^2 (1 + 4\pi n f_0 / k_0^2) (1 + 4\pi n f_1 / k_0^2), \quad (1.11)$$

où  $f_0$  désigne la fonction de diffusion monopolaire (i.e. le  $f$  des formules précédentes) et  $f_1$  la fonction de diffusion dipolaire. En notant que  $k^2 = \omega^2 \chi_{\text{eff}} \rho_{\text{eff}}$ , on peut montrer que (1.11) conduit à

$$\frac{\chi_{\text{eff}}}{\chi_0} = 1 + 4\pi n f_0 / k_0^2 \quad (1.12a)$$

$$\frac{\rho_{\text{eff}}}{\rho_0} = 1 + 4\pi n f_1 / k_0^2. \quad (1.12b)$$

On retrouve les éléments de la vision simple de Wood : la compressibilité effective est donnée par la diffusion monopolaire, qui traduit les changements de volumes de l'inclusion ; et la masse volumique effective est donnée par la diffusion dipolaire, qui traduit les déplacements de l'inclusion. Le milieu effectif suit d'ailleurs bien la formule de Wood dans la plupart des cas, quand  $f_0$  et  $f_1$  se comportent de façon purement élastique et inertielle, respectivement (voir Annexe C).

Mais les équations (1.12) sont plus riches que celle du modèle de Wood puisque qu'elles permettent de tenir compte des cas plus complexes, notamment lorsque les inclusions présentent des résonances. Notons à ce propos que les modèles de diffusion permettent d'étendre la notion de milieu effectif à des fréquences allant au delà de la limite de grande longueur d'onde.

---

3. Voir les articles d'Aristegui et Angel [13] et [14].

En effet, le nombre d'onde effectif calculé s'entend comme provenant d'une moyenne sur les réalisations du désordre (si mal justifiée dans notre approche simple ci-dessus). Cela signifie que même à haute fréquence, on peut mesurer un nombre d'onde effectif dans un milieu hétérogène. Reprenons par exemple le cas du milieu central de la figure 1.1. À hautes fréquences, le front d'onde est très déformé par la présence des inhomogénéités, et l'onde que l'on mesure en sortie ne s'est clairement pas propagée dans un milieu homogène. Mais on peut s'intéresser à la propagation dans des milieux différents bien que statistiquement équivalents, en déplaçant les inclusions par exemple. Ce que disent les modèles de diffusion, c'est que le champ moyen aura alors les caractéristiques d'un champ effectif qui se serait propagé dans un milieu homogène effectif. On parle du champ cohérent pour désigner ce champ issu d'une moyenne sur les réalisations du désordre. Expérimentalement, on peut faire ce genre de mesure soit en profitant du déplacement des inclusions [4], soit en mesurant la transmission en divers points d'un grand échantillon [11]. Il est intéressant de noter qu'en toute rigueur la condition de "longueur d'onde grande devant la taille typique des inhomogénéités du milieu" que l'on a invoquée pour introduire la notion de milieu effectif n'apparaît en fait nulle part dans les modèles de diffusion. Ce qui est établi, c'est que le champ **cohérent** se comporte comme s'il avait traversé un milieu effectif. Mais il se trouve qu'à grandes longueurs d'onde, en pratique, le champ que l'on mesure à partir d'une seule réalisation du désordre est très souvent une bonne estimation du champ cohérent.

### 1.3 Diffusion acoustique par une bulle

Les modèles de diffusion reposent sur la connaissance de la diffusion par une seule inclusion : il faut connaître les fonctions  $f_0$  et  $f_1$ . L'annexe B détaille les calculs pour une inclusion sphérique d'un matériau quelconque. On va ici s'attacher au diffuseur qui nous intéresse plus particulièrement : la bulle.

#### 1.3.1 Une bulle est un oscillateur harmonique

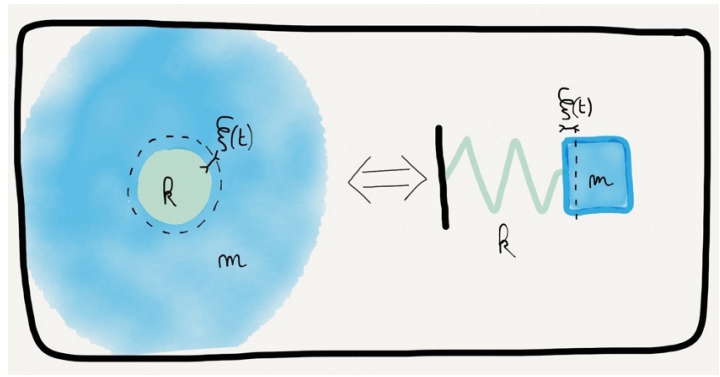
Une expérience très simple permet d'appréhender la particularité d'une bulle d'un point de vue acoustique. Cette expérience est d'ailleurs réalisée spontanément par les enfants lorsqu'ils dégustent leur boisson favorite à l'aide d'une paille : au lieu d'aspirer, ils soufflent, et les bulles qui en résultent font du bruit (au grand désagrément des parents, la plupart du temps). Le bruit que l'on entend correspond à une note caractéristique, de fréquence inversement proportionnelle au rayon de la bulle (essayez avec des pailles de diamètres différents). L'ordre de grandeur est surprenant : pour une bulle de 3 mm de rayon, la fréquence est de l'ordre de 1 kHz. Or, à cette fréquence, les longueurs d'onde dans l'air et dans l'eau sont respectivement de 34 cm et 1,5 m, c'est-à-dire bien plus grandes que la taille de la bulle. C'est une surprise parce qu'un résonateur est généralement d'une taille commensurable avec la longueur d'onde<sup>4</sup> qui correspond à sa fréquence de résonance. La bulle présente ce qu'on va appeler une résonance basse fréquence, que l'on nomme fréquence de Minnaert, du nom de son découvreur [2].

---

4. Avec le quart de la longueur d'onde, pour être plus exact.

Cette résonance basse fréquence a une explication simple si l'on songe à la bulle comme à un oscillateur harmonique. Comme illustré dans la figure 1.7, une bulle de gaz entourée de liquide a un comportement analogue à celui d'un système masse ressort, l'exemple classique d'oscillateur harmonique. Si l'on comprime une bulle puis qu'on la relâche, elle va osciller autour de sa position d'équilibre à sa fréquence propre, tout comme une masselotte accrochée à un ressort que l'on écarte et qu'on relâche. La pulsation propre est donnée par la célèbre formule  $\sqrt{k/m}$  où  $k$  est la raideur du ressort et  $m$  la masse de la masselotte. Dans le cas de la bulle, cette même formule s'applique avec une raideur donnée par la compressibilité de l'air, et une masse par l'inertie de l'eau [16]. La fréquence de la résonance est donc particulièrement basse parce que le ressort est mou tandis que la masse est grande.

FIGURE 1.7 – La respiration d'une bulle de gaz dans un liquide est analogue aux oscillations d'un système masse ressort.



Revenons à notre expérience de bulles avec une paille. Pour peu que l'on injecte l'air un peu rapidement, la bulle ne sera pas à son volume d'équilibre quand elle arrivera dans l'eau. Tout en remontant, elle oscille donc à sa fréquence de résonance, ce qui engendre le son que l'on entend. Ce son est d'ailleurs une des sources d'amortissement pour la bulle : une partie de l'énergie d'oscillation est convertie en énergie de rayonnement. Les deux autres sources d'amortissement des oscillations de la bulles sont les frottements visqueux dans l'eau et les échanges thermiques entre l'air et l'eau.

### 1.3.2 Fonction de diffusion d'une bulle

Les expressions détaillées sont établies en annexe (voir B.2.4). On se contente ici de rappeler les principales formules s'appliquant pour le rayonnement d'une bulle. À la limite basses fréquences, une bulle de rayon  $R_0$  excitée par une surpression  $p \times \exp[-i\omega t]$  génère une onde sphérique  $p \times f_0 \exp[i(k_0 r - \omega t)]/r$  avec une fonction de diffusion monopolaire  $f_0$  donnée par

$$f_0(\omega) = \frac{R_0}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - 1 - i\delta}, \quad (1.13)$$

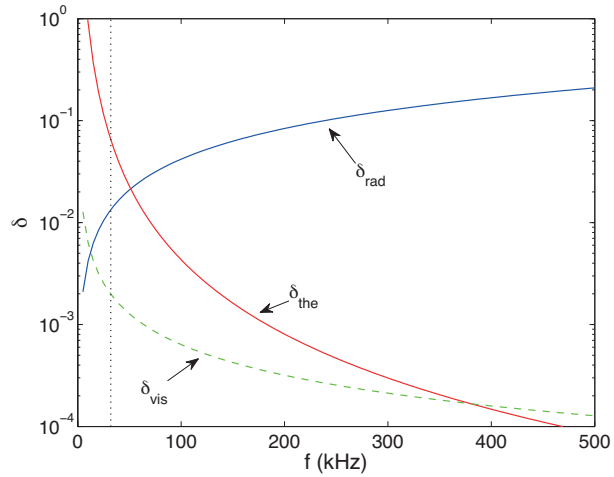
expression dans laquelle on reconnaît la fonction de réponse d'un oscillateur harmonique de pulsation propre  $\omega_0$  et de taux d'amortissement  $\delta$ .

La fréquence de Minnaert est donnée par

$$\omega_0^2 = \frac{3\kappa P_0 + 4\mu'}{\rho R_0^2}, \quad (1.14)$$

où  $\kappa$  désigne l'exposant polytropique du gaz,  $P_0$  sa pression,  $\mu'$  la partie réelle du module de cisaillement du milieu hôte, et  $\rho$  sa masse volumique. On retrouve dans cette expression le  $\sqrt{k/m}$  de l'oscillateur harmonique, avec un ressort donné par la pression du gaz et l'élasticité du milieu hôte, et une masse donnée par la masse volumique du milieu hôte. Dans un fluide ( $\mu' = 0$ ) la fréquence de résonance d'une bulle de 0.1 mm de rayon est de l'ordre de 30 kHz (la valeur précise dépend notamment de la nature du gaz, et de la masse volumique du liquide bien sûr). La longueur d'onde à résonance est donc de l'ordre de 5 cm, soit 500 fois plus grande que le rayon de la bulle, raison pour laquelle on parle de résonance "basse fréquence". Pour un milieu élastique, la fréquence de résonance va être augmentée du fait de la raideur supplémentaire, mais restera "basse fréquence" pour un matériau mou, c'est-à-dire pour  $\mu'$  comparable ou inférieur à  $P_0$ .

FIGURE 1.8 – Contributions radiative, thermique et visqueuse au taux d'amortissement, en fonction de la fréquence, pour une bulle d'air dans l'eau de 0.1 mm de rayon. Les pointillés verticaux marquent la position de la résonance.



Le taux d'amortissement  $\delta$  de la bulle se décompose en trois contributions : une radiative  $\delta_{\text{rad}} = k_0 R_0$  et deux de dissipation, thermique  $\delta_{\text{the}}$  et visqueuse  $\delta_{\text{vis}}$  dont les expressions sont données dans l'annexe B (page 175). Comme le montre la figure 1.8, les pertes radiatives deviennent de plus en plus importantes à mesure que la fréquence augmente. À basses fréquences, par contre, c'est surtout la dissipation qui domine. Pour une bulle d'air dans l'eau de 0.1 mm de rayon, le taux d'amortissement à résonance est de l'ordre de 0.1, et ce sont les pertes thermiques qui dominent.

La figure 1.9 permet d'apprécier l'efficacité d'une bulle en tant que diffuseur acoustique : la fonction de diffusion vers l'avant d'une bulle de 0.1 mm de rayon est plusieurs ordres de grandeur plus grande que celle d'une bille d'acier de même rayon. À résonance (30 kHz), le rapport est de plus de 5 ordres de grandeur ! Il faut bien voir ici que la bille d'acier n'est pas une exception, elle a un comportement de diffuseur standard, avec un bon contraste d'impédance certes, mais qui suit la loi de la diffusion de Rayleigh, selon laquelle un diffuseur de petite taille (par rapport à la longueur d'onde) est peu efficace. C'est bien la bulle qui fait figure d'exception, capable de diffuser fortement une onde acoustique alors même qu'elle est petite. Mais le plus important est que la forte diffusion de la bulle ne se limite pas à la fréquence



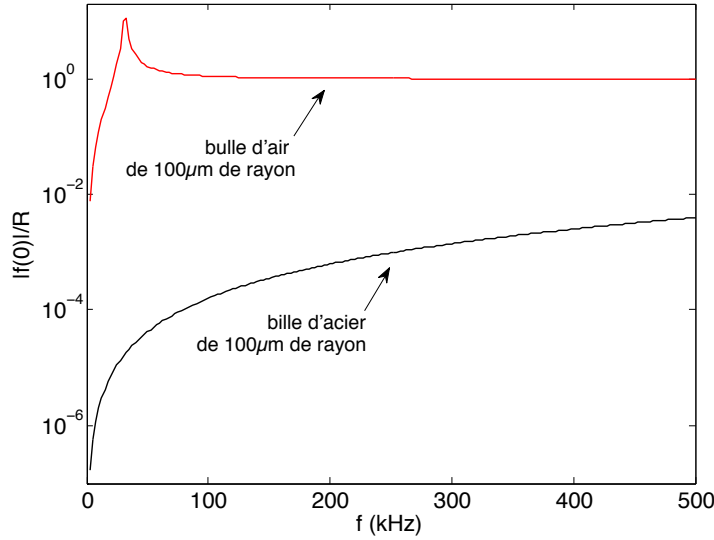


FIGURE 1.9 – Module de la fonction de diffusion vers l’avant en fonction de la fréquence pour une bulle d’air (rouge) et une bille d’acier (noir) dans de l’eau. Les deux diffuseurs ont un rayon de  $R = 100\,\mu\text{m}$  et les fonctions de diffusion sont adimensionnées par ce rayon.

de résonance. On voit d’ailleurs sur la figure 1.9 que le pic de résonance fait presque figure de détail, comparé à la grande plage de fréquences sur laquelle la bulle reste un diffuseur très fort. La fonction de diffusion de la bulle prend en effet une valeur constante, que l’on retrouve dans l’équation (1.13) qui prédit  $f_0 = -R_0$  pour  $\omega \gg \omega_0$ . Ainsi, même à 300 kHz, la bulle diffuse 1000 fois plus que la bille d’acier. Le signe négatif de la fonction de diffusion sur ce plateau appelle d’ailleurs un commentaire. Pour le comprendre, on peut regarder l’équation canonique d’un oscillateur harmonique de masse  $m$  excitée par une force  $F(t)$  :

$$\omega_0^2 x + \ddot{x} = \frac{F(t)}{m}. \quad (1.15)$$

Pour le cas d’un forçage harmonique à une pulsation  $\omega$ , l’oscillateur a un comportement très différent selon qu’il est forcé en dessous ou au dessus de sa pulsation propre. En effet, pour  $\omega < \omega_0$  le terme inertiel dans (1.15) est plus petit que le terme élastique, et l’oscillateur a un comportement élastique, en phase avec l’excitation. Par contre, pour  $\omega > \omega_0$ , c’est le terme inertiel qui domine ; l’oscillateur adopte un mouvement en opposition de phase avec l’excitation. Pour une bulle, cela se traduit de la façon suivante. Pour une sollicitation à une fréquence inférieure à sa fréquence de résonance, la bulle voit son volume décroître quand elle subit une surpression, suivant un comportement “normal”, quasi-statique. Mais au delà de la fréquence de Minnaert, la bulle est en opposition de phase et son volume croît en réponse à une surpression. Autrement dit, la bulle a une compressibilité négative. On verra que, sur une certaine gamme de fréquences, cette caractéristique étonnante se retrouve à l’échelle de tout le milieu bulleux.





## Chapitre 2

# Milieux bulleux

*One likes the bread that one was raised on.*

---

R. Carl Hoseney

Ce chapitre est consacré à la propagation d’ondes acoustiques dans les milieux bulleux, c’est à dire dans des suspensions de bulles de concentration relativement faible (fraction volumique de gaz de moins de 1%). Il s’agit d’une activité initiée à l’université du Manitoba, au Canada, avec une motivation à la fois appliquée (spectroscopie ultrasonore de la pâte à pain) et fondamentale (correction à l’ISA). Le chapitre reprend trois articles, publiés entre 2008 et 2011.

Les milieux bulleux sont des systèmes exceptionnels pour étudier la propagation des ondes en régime de diffusion multiple. En effet, comme les bulles résonnent, elles diffusent fortement ; et comme cette résonance est à basse fréquence, la notion de milieu effectif a un sens. Une illustration des propriétés acoustiques d’un milieu bulleux est donnée par la figure 2.1. On y présente la vitesse et l’atténuation effectives d’une onde acoustique, en fonction de la fréquence, pour une eau bulleuse contenant une fraction volumique de 0,4% de bulles d’air de  $100\text{ }\mu\text{m}$  de rayon. On constate que, malgré la très faible concentration en bulles, le milieu n’a plus du tout les caractéristiques acoustiques de l’eau pure. La propagation est très dispersive : vitesse et atténuation dépendent fortement de la fréquence. Les courbes correspondent ici aux prédictions des modèles de Foldy (trait plein) et de l’ISA (tirets). Remarquons que les deux modèles donnent des prédictions identiques jusqu’à des fréquences élevées.<sup>1</sup> Cela s’explique par la réponse majoritairement monopolaire des bulles à basse fréquence (voir par exemple la figure B.2 en annexe).

On peut identifier 3 régimes de propagation sur la figure 2.1. Comprendre l’origine et les caractéristiques de ces 3 régimes est facilité par la ré-écriture de l’équation de Foldy  $k^2 =$

---

1. Le modèle de Foldy est tellement populaire chez les acousticiens, qu’on oublie parfois que ce n’est qu’une approximation de l’ISA. Ando *et al.* en ont fait la démonstration en apportant à Foldy une correction qui existait déjà [17].

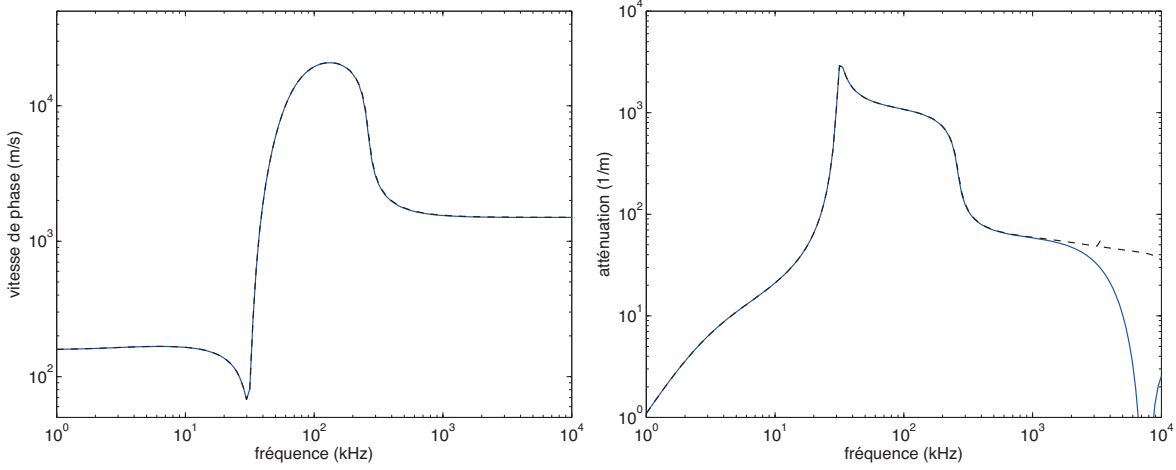


FIGURE 2.1 – Vitesse de phase (gauche) et atténuation (droite) d’une onde acoustique dans de l’eau contenant 0,4% de fraction volumique d’air, sous forme de bulles de  $100\ \mu\text{m}$  de rayon. Le trait plein correspond à la prédiction du modèle de Foldy, les tirets à celle de l’ISA.

$k_0^2 + 4\pi n f$  (voir eq. (1.9a)) sous la forme :

$$k^2 = k_0^2 \left( 1 + \frac{f \lambda_0^2}{\pi d^3} \right), \quad (2.1)$$

où  $d$  désigne la distance typique entre bulles ( $n = 1/d^3$ ) et  $\lambda_0 = 2\pi/k_0$  la longueur d’onde dans le milieu hôte.

- Pour des fréquences inférieures à 30 kHz, c’est-à-dire la fréquence de Minnaert des bulles, la vitesse de phase est très basse, ici de l’ordre de 160 m/s. On peut qualifier cette gamme de fréquence de régime de Wood (prendre l’équation (1.13) à la limite  $\omega \ll \omega_0$  pour s’en convaincre), parce que la loi de Wood s’y applique bien : le milieu bulleux se comporte comme un liquide rendu compressible du fait de la présence des bulles. C’est ce régime de Wood qu’on peut mettre en évidence avec l’effet “chocolat chaud”. Dans ce régime, l’atténuation est principalement due à la dissipation (d’origine essentiellement thermique pour des bulles d’air dans l’eau).
- À la résonance, la propagation devient très dispersive, avec une vitesse de phase qui décroît brusquement et une atténuation qui passe par un pic. Ce pic est suivi d’un plateau sur lequel l’atténuation reste à une valeur considérable. Dans notre exemple, l’atténuation est de l’ordre de  $1\ \text{mm}^{-1}$ , ce qui signifie qu’une épaisseur d’à peine 2, 3 mm suffit à diviser l’amplitude de l’onde par un facteur 10 (à comparer à la longueur d’onde dans l’eau à 100 kHz, qui est de 1,5 cm). Cette forte atténuation n’est pas d’origine dissipative, mais la manifestation d’un régime évanescent, parce que la compressibilité effective du milieu est négative. En effet, après leur fréquence de résonance, les bulles répondent en opposition de phase au champ qui les excite, ce qui se traduit pas une fonction de diffusion qui vaut  $f \simeq -R_0$  (voir (1.13)). En insérant cette valeur dans l’équation (2.1), on constate que, sur une grande plage de fréquences,  $R_0 \lambda_0^2 / (\pi d^3) \gg 1$ , ce qui conduit à  $k^2 < 0$  et donc à un régime évanescent. C’est une conséquence

du caractère basse fréquence de la résonance de Minnaert ; rappelons que pour une bulle d'air dans l'eau, la longueur d'onde à résonance est 500 fois plus grande que le rayon de la bulle. Il est intéressant de remarquer que ce régime évanescent existe même si la résonance des bulles n'est pas très marquée. Un mauvais facteur de qualité ou une polydispersité trop grande sont par exemple connus pour masquer les effets résonants. Sur la figure 2.1, ces deux effets supprimeraient effectivement le petit pic d'atténuation autour de la fréquence de résonance. Mais le régime évanescent n'est lui que peu affecté parce qu'il provient de la phase de la réponse des bulles, pas de son amplitude. Remarquons enfin que, puisqu'il s'agit d'un régime évanescent, l'atténuation est dominée par les caractéristiques “réelles” du milieu, tandis que la vitesse dépend des caractéristiques “imaginaires”. Cela donne des effets qui peuvent paraître contre-intuitifs, comme par exemple le fait que l'atténuation ne dépende pas de la viscosité du milieu. En l'occurrence, changer la viscosité va surtout affecter la vitesse de phase.

- On sort du régime évanescent lorsque  $\lambda_0 = d\sqrt{\pi d/R}$ , c'est-à-dire à peu près lorsque la longueur d'onde devient de l'ordre de la distance moyenne entre bulles. Le déphasage lié à la propagation dans l'eau d'une bulle à l'autre est alors suffisant pour compenser la phase négative des bulles. Ou, pour le dire autrement, la compressibilité de l'eau ne peut plus être négligée. Les bulles n'ont alors que peu d'effet sur la vitesse de propagation : on retrouve la vitesse de propagation dans le liquide pur. Et l'atténuation est dominée par le rayonnement des bulles (voir figure 1.8).

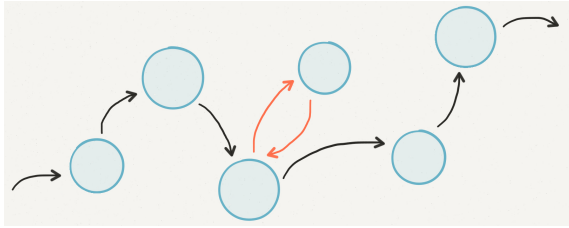


FIGURE 2.2 – Vision schématique d'un chemin de diffusion multiple. À chaque diffuseur est associé une fonction de diffusion  $f$  et les flèches symbolisent une propagation en  $\exp(ik_0 r)/r$  dans le milieu hôte. En rouge, on représente une boucle, un processus négligé dans le modèle de Foldy.

Le modèle de Foldy est un modèle de diffusion multiple : l'onde qui traverse le milieu a été diffusée un grand nombre de fois. Mais cela reste un modèle approché.<sup>2</sup> Une première approximation consiste à considérer que les diffuseurs sont ponctuels, et qu'ils peuvent donc être aussi proches que l'on veut les uns des autres.<sup>3</sup> On traite alors une sorte de gaz parfait de diffuseurs ponctuels. Nous reviendrons sur cette approximation au cours du chapitre, mais nous allons la supposer justifiée dans un premier temps.

Une seconde approximation concerne l'hypothèse que le champ total ressenti par un diffuseur en un point est le même que celui qui règnerait en ce point en l'absence de diffuseur. On associe souvent à cette phrase l'image d'une boucle de diffusion, comme illustré sur la figure 2.2. Le modèle de Foldy néglige donc les boucles, c'est-à-dire les processus de diffusion

2. Précisons ici qu'on parlera du modèle de Foldy tout au long de ce chapitre, mais qu'il est équivalent à l'ISA ou au modèle de Waterman et Truell dans le cas qui nous intéresse (un milieu dilué de bulles). Les corrections que l'on évoque ne sont donc pas à chercher dans l'ISA ou WT.

3. Cela se voit dans la borne inférieure de la seconde intégration dans (1.6), que l'on a prise égale à 0.

qui passent plusieurs fois par le même diffuseur. Comme le modèle est établi dans la limite diluée, les diffuseurs sont en moyenne loin les uns des autres, et l'approximation paraît légitime. Mais pour les bulles, la diffusion à résonance devient si grande que négliger les boucles paraît impossible. Waterman et Truell ont proposé un critère simple pour évaluer l'importance de ces boucles négligées (voir page 518 dans [15]). Si on a calculé que le champ de pression au niveau d'une bulle était  $p_i$ , on a négligé notamment le champ en  $p_i f^2 \exp(i2k_0 r)/r^2$  fourni par la boucle avec une autre bulle à une distance  $r$  (voir la figure 2.2). Le critère consiste alors à comparer  $p_i$  à la contribution d'une "boucle moyenne". On trouve que les boucles sont négligeables si

$$\left| f^2 \int n d^3 r \frac{e^{2ik_0 r}}{r^2} \right| \ll 1 \quad \rightarrow \quad n\sigma_s/k_0 \ll 1, \quad (2.2)$$

où  $n$  est le nombre moyen de diffuseurs par unité de volume et  $\sigma_s = 4\pi|f|^2$  est la section efficace de diffusion du diffuseur.<sup>4</sup> Pour un diffuseur de type Rayleigh de rayon  $R$ ,  $\sigma_s \simeq (k_0 R)^4 R^2$  et on trouve que, même à la limite de concentration extrême ( $n \simeq 1/R^3$ ),  $n\sigma_s/k_0 \simeq (k_0 R)^3$ , bien petit par rapport à 1 à la limite basses fréquences qui nous intéresse ici. En revanche pour des bulles à résonance, le critère n'est pas du tout rempli, comme le montre la figure 2.3. On attend donc un écart au modèle de diffusions indépendantes à résonance, même à faible concentration.

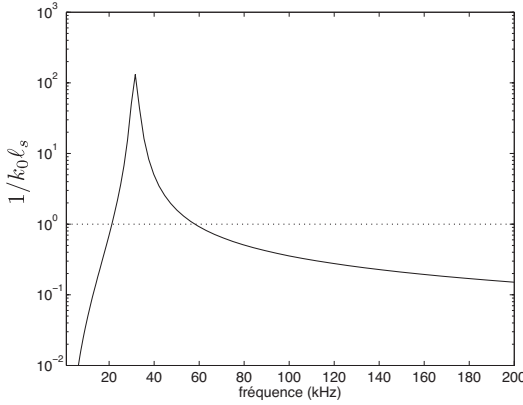


FIGURE 2.3 – Le critère de Waterman et Truell  $n\sigma_s/k_0 = 1/(k_0 \ell_s)$  ( $\ell_s$  est le libre parcours moyen élastique) en fonction de la fréquence, pour le milieu bulleux de la figure 2.1. On constate que, même pour une faible concentration en bulles (ici  $\Phi = 0,4\%$ ), le critère n'est pas du tout rempli à résonance puisque  $1/(k_0 \ell_s)$  est de l'ordre de 100.

Dans leur article de synthèse de 1989, Commander et Prosperetti [18] arrivent effectivement à la conclusion qu'à résonance le modèle de Foldy n'est pas adapté. Cela a donné lieu à de nombreuses propositions théoriques de correction [19–22] et à des controverses sur l'ordre en  $f$  que devait avoir ce terme de correction [23–26]. Du côté des expériences, en revanche, on trouve très peu d'articles. La plupart des travaux théoriques se reposent d'ailleurs sur les données expérimentales de Silberman [27], assez anciennes et acquises dans des conditions plutôt discutables. À l'université du Manitoba, nous avons entrepris de monter une expérience permettant

4. Waterman et Truell limitent leur intégration à la boucle de rayon  $\lambda/4$ , parce que les pellicules suivantes sont d'amplitudes comparables, mais de signes alternativement négatifs et positifs. En invoquant une petite partie imaginaire de  $k_0$ , on peut intégrer jusqu'à l'infini. On trouve alors le même résultat que WT, à un facteur  $1/2$  près, ce qui ne change pas l'ordre de grandeur du critère.

d'acquérir des données fiables sur des systèmes bulleux monodisperses bien caractérisés. C'est cette expérience que décrit le premier article reproduit dans la partie 2.1. Notre motivation était d'apporter des données expérimentales plus complètes sur l'inadéquation du modèle de Foldy pour décrire les liquides bulleux à résonance, permettant à terme de déterminer quel était le meilleur modèle. La motivation n'était pas que d'ordre fondamental. Une application de l'acoustique des milieux bulleux est en effet de développer une technique de spectroscopie permettant de déterminer la taille des bulles dans un milieu optiquement opaque. La figure 2.1 est une bonne illustration de l'idée : si la mesure de l'atténuation acoustique dans un milieu fait apparaître un pic marqué à une certaine fréquence, on peut en déduire la taille des bulles à l'origine de ce pic. Pour cela, il faut bien entendu disposer du bon modèle pour interpréter les données.

## 2.1 Bulles dans un fluide à seuil [Article 1]

On reproduit ci-dessous un [article](#) paru dans le *Journal of the Acoustical Society of America* en 2008 [28].<sup>5</sup> L'originalité de la démarche expérimentale est de piéger les bulles dans un fluide à seuil (du gel coiffant). On échappe ainsi au problème du mouvement des bulles qui rend la détermination de la distribution en taille difficile, tout en bénéficiant d'un milieu hôte aux caractéristiques acoustiques très proches de celles de l'eau. Une technique d'injection originale nous a permis d'obtenir des échantillons d'une excellente monodispersité, un paramètre essentiel pour bien apprécier les effets résonants.

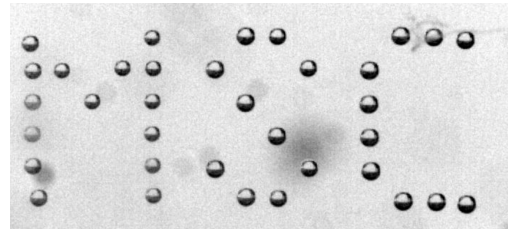


FIGURE 2.4 – Dans un fluide à seuil, on peut placer des bulles à l'emplacement de son choix. Cela permet d'obtenir des milieux bulleux bien contrôlés. Ici les bulles font de l'ordre de  $100\ \mu\text{m}$  de rayon.

Du point de vue acoustique, les expériences sont compliquées par le fait que la résonance d'une bulle se produit à très basse fréquence. Pour les bulles stables que nous avons obtenues, le rayon était de l'ordre de  $100\ \mu\text{m}$ , soit une résonance à 30 kHz, ce qui ne correspond pas à une fréquence standard pour les expériences ultrasonores. La principale difficulté est que la longueur d'onde est grande à ces fréquences (5 cm à 30 kHz), ce qui impose de travailler avec des échantillons de grandes tailles pour limiter les effets de diffraction et de réflexions multiples.

Le résultat de notre étude, assez inattendu, est que le modèle de Foldy prédit très bien le pic d'atténuation à résonance dans nos échantillons (voir la [figure 8](#) de l'article 1), et ce pour des fractions volumiques de gaz allant jusqu'à 1%.<sup>6</sup> Remarquons que la mesure de la vitesse de phase est délicate dans le régime évanescent parce que mesurer des vitesses de l'ordre de 1000 m/s sur une épaisseur de milieu de 0,5 mm nécessite d'être sensible à de très petits

5. Une erreur est à signaler dans l'article (non corrigée dans la version reproduite ici) : dans l'équation (9), il faut lire  $-i$  au dénominateur.

6. Une telle fraction volumique de gaz fait presque figure de milieu concentré pour un liquide bulleux, les études dans le domaine étant généralement pour des fractions volumiques de quelques centièmes de pourcent.

déphasages. Ainsi, le pic de vitesse mesuré en sortie de régime évanescent sur la figure [figure 8](#) n'est sans doute pas significatif. D'autant qu'à cette fréquence une moyenne sur les réalisations du désordre aurait peut-être été nécessaire pour réduire la contribution du champ incohérent.

Les expériences rapportées dans cet article démontrent également que la mesure acoustique est sensible à la polydispersité du milieu ([figures 9 et 10](#)), un paramètre intéressant pour la spectroscopie. Enfin, pour un milieu bulleux de fraction volumique de gaz de 5%, les mesures ont montré l'existence d'une coda, signature d'une forte diffusion multiple incohérente ([figure 11](#)).

# Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments

Valentin Leroy,<sup>1</sup> Anatoliy Strybulevych,<sup>1</sup> Martin G. Scanlon,<sup>2</sup> and John H. Page<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Department of Physics & Astronomy, University of Manitoba, Winnipeg, Canada*

<sup>2</sup>*Department of Food Science, University of Manitoba, Winnipeg, Canada*

(Dated: January 22, 2008)

Measurements of the phase velocity and attenuation of sound in concentrated samples of bubbly gels are presented. Hair gel was used as a matrix material to obtain well characterized distributions of bubbles. Ultrasonic measurements were conducted over a large range of frequencies, including the resonance frequencies of the bubbles. Surprisingly good agreement with Foldy's prediction was found, even for monodisperse samples at resonance frequencies, up to volume fraction of 1 %. Beyond this concentration, the effects of high-order multiple scattering were observed. These results support the feasibility of ultrasonic techniques to investigate the size distribution of bubbles in a weak gel or liquid.

PACS numbers: 43.30.Es, 43.35.Bf

## I. INTRODUCTION

It is well known that the presence of bubbles in a liquid has a tremendous impact on its acoustic properties. For example, the injection of air in water with a volume fraction of  $\Phi = 0.4\%$  is enough to reduce the velocity of sound at low frequencies to roughly  $0.2\text{ mm}/\mu\text{s}$ , a value which is even lower than the velocity of sound in the air that comprises the bubbles. This property, strange as it may seem, is well established<sup>1</sup> and has been thoroughly checked experimentally.<sup>2-4</sup> On the other hand, the behavior of ultrasonic velocity and attenuation at higher frequencies is still not fully understood. According to Foldy's model,<sup>5</sup> the effective wave vector  $k$  for a monodisperse population of bubbles is given by

$$k^2 = \left( \frac{\omega}{v} + i\frac{\alpha}{2} \right)^2 = \frac{\omega^2}{v_0^2} + 4\pi n f(\omega, r), \quad (1)$$

where  $v_0$  is the velocity of sound in the pure medium,  $n$  the number of bubbles per unit volume, and  $f(\omega, r)$  the scattering function at angular frequency  $\omega$  for a bubble of radius  $r$ . Figure 1 shows the attenuation  $\alpha$  and phase velocity  $v$  in water for a  $0.4\%$  volume fraction of  $100\text{ }\mu\text{m}$ -radius bubbles, as calculated by Eq. (1). As the frequency gets close to the resonance frequency of the bubbles ( $\simeq 30\text{ kHz}$  in this case), the dispersion and the attenuation dramatically increase. Few experiments have been done to check the validity of Foldy's expression around the resonances of bubbles. In 1957, Silberman<sup>6</sup> acquired data by measuring standing waves in pipes filled with bubbly water. Unfortunately, the method was not very accurate for high attenuation regimes, because the requisite standing waves could not develop. Only a rough estimation of the attenuation was possible and results exhibited a strong discrepancy with the model in the presence of resonant effects, *even at volume fractions as low as a few hundredths of 1 %*, as pointed out by Commander and Prosperetti.<sup>7</sup> More recently, Wilson *et al.* reported significant progress<sup>4</sup> by developing an impedance tube specifically designed for exploring the high attenuation regime in bubbly liquids.<sup>8</sup> They found good agreement

with Foldy's model, but their bubbly liquids were very dilute ( $0.054\%$  at most) and the exact distribution of the bubble radii was not known.

In contrast to the lack of experimental investigations on this subject, the number of theoretical discussions of Foldy's model is striking.<sup>9-13</sup> In 1961, Waterman and Truell<sup>9</sup> published a criterion for the validity of Foldy's equation, demonstrating that an improvement of the model was needed when resonant effects were to be considered. The failure of Foldy's model is usually attributed to its inability to take into account the coupling between bubbles. Indeed, in Eq. (1), the scattering function  $f$  is that of an individual bubble. When the response of the bubbles to the acoustic energy input is so strong that interactions between them cannot be neglected,  $f$  should be replaced by a "collective" scattering function  $F$ . Several authors, using different approaches to the problem, proposed expressions for this new scattering function.<sup>10-13</sup> But none of these corrections<sup>14</sup> to Foldy's model has been able to fit Silberman's historical data better than Foldy's original model.

The aim of the present article is to fill the gap in reliable experimental data on the propagation of sound in a bubbly medium at frequencies close to the resonance frequency of the bubbles. Wilson's work<sup>4</sup> represented a significant advance on Silberman's experiments, but results for higher concentrations of bubbles ( $\Phi > 0.1\%$ ) and for accurately known size distributions are critically needed. In section II, we present the experimental set-up we developed to produce well-characterized bubbly media, and to investigate their acoustic properties. Section III briefly introduces Foldy's model, and the correction proposed by Henyey.<sup>12</sup> Section IV is devoted to the results for four different samples, with volume fractions of bubbles ranging from  $0.15\%$  to  $5\%$ . These new results will be compared with Foldy's prediction, as well as with Henyey's model. Finally, section V examines the conclusions that can be drawn from our analysis of these experiments.

It is worth noting that this question of knowing how sound propagates in a bubbly liquid when resonant ef-



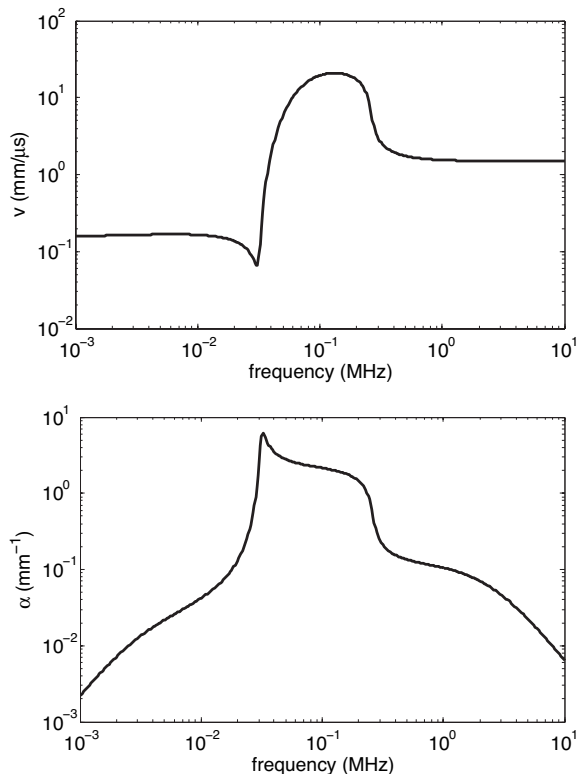


FIG. 1. Prediction of Foldy's model for the phase velocity and attenuation of sound in water with a 0.4% volume fraction of 100  $\mu\text{m}$ -radius bubbles.

fects are strong is not only of academic interest. From a practical point of view, acoustic methods are a very promising tool for investigating the size distribution of bubbles in a medium.<sup>15,16</sup> Since such methods rely precisely on the resonances of bubbles, a reliable model, valid for resonance frequencies, is necessary.

## II. EXPERIMENTAL SET-UP

To bring something new to the subject matter, experiments on propagation of sound in bubbly liquids have to satisfy three criteria: (1) media with a range of bubble concentrations, going from very dilute to volume fractions of several percent, should be investigated; (2) the population of bubbles should be well characterized; (3) the range of frequencies should include the resonance frequencies of the bubbles. With these stipulations, several experimental difficulties are apparent.

Standard techniques to measure the acoustic properties of a material involve propagating an acoustic pulse of short duration through a sample of the material. The time taken for each monochromatic wave component of the pulse to traverse the sample gives the phase velocity of sound in the material  $v(\omega)$  (more precisely,  $v(\omega)$  is the speed at which a surface of constant phase propagates at each frequency), and the change in the wave amplitude gives the attenuation. In practice, a precise

analysis with Fourier transforms is used, and comparison with propagation in a reference medium (usually water) is necessary. Such an experiment gives accurate measurements provided that the wavelength of the acoustic wave is small compared with two length scales: the lateral dimension of the sample, and the distance between the sample and the sound source. If this condition is not respected, diffraction and multiple reflections jeopardize the success of the technique. For bubbly liquids, this restriction has been a major impediment to experimental success. Indeed, the resonance of a bubble occurs at a very low frequency. As a rule of the thumb, a 1-mm-radius air bubble resonates in water at 3 kHz, which corresponds to a wavelength of 50 cm. Wilson *et al.* bypassed this difficulty by using the confined geometry of an impedance tube.<sup>8</sup> This solution necessitated the use of very thick stiff walls for the tube, so that the waves propagating in the tube were well approximated as plane waves. But the approximation is correct only for a narrow range of frequencies (specially designed to include the resonances of the bubbles in Wilson's case), and the use of thick walls makes *in situ* imaging of bubbles impossible. We used a different approach. As the resonance frequency of a bubble is inversely proportional to its radius, smaller bubbles make the experiment easier. In our samples, the bubble radius was typically 80  $\mu\text{m}$ . The resonance frequency for bubbles of such a radius is 50 kHz, decreasing the wavelength to the more manageable scale of 3 cm.

A second experimental difficulty comes from the huge attenuation of sound in bubbly liquids. The consequence is that, in a transmission experiment, signals are of very small amplitude. A potential solution is to use a reflection configuration instead of a transmission one. But when the wavelength is large, so that it is not totally negligible compared with the dimensions of the set-up, many complications arise in a reflection set-up. Wilson *et al.* took advantages of their confined geometry to solve this problem. In our case, we used very thin samples, to insure a sufficiently large signal in transmission despite the huge attenuation.

Lastly, the question of obtaining a well-characterized medium is not a trivial one. Standard techniques of injection of gas in water, with needles and a pump or with an electrolysis device, are known to be capricious.<sup>4,17</sup> The production of bubbles is usually not repeatable from one experiment to the next or even during a single experiment. Moreover, the experimental sample cell is more difficult to design because a bubble generator has to be included. Our solution to this problem was to build stable samples of bubbly media by trapping bubbles in a gel whose yield stress was large enough to compensate for the buoyancy of the bubbles. This approach allowed us to work with samples whose bubble content was precisely known.

### A. Sample preparation

A commercial hair gel<sup>18</sup>, diluted with water and degassed, was used as the liquid in which bubbles were

injected. The benefit of hair gel for this experiment is that it flows only if the applied stress is larger than a threshold value (the yield stress). Hence if bubbles are sufficiently small, they remain trapped in the gel, at the exact place that they have been injected. In addition, from the acoustic point of view, the hair gel is very similar to water, at least for the frequencies considered in these experiments.

The samples were produced by a method developed in our laboratory and depicted in Fig. 2. A thin capillary (inner diameter of  $20\text{ }\mu\text{m}$ ), connected to a syringe with air at pressure  $P$ , is moved at constant speed  $V$  in the gel. With a well-controlled flow of gas through the capillary, as set by the pressure  $P$ , the movement generated an array of equally spaced bubbles of the same size. Although a discussion of the exact mechanisms involved in this process is outside the scope of this article, we note that by varying the two parameters  $P$  and  $V$ , different bubble radii and distances between bubbles could be obtained. For our samples, we used a typical speed of  $V = 1\text{ cm/s}$  and a pressure of  $P = 1.7\text{ bar}$ , generating  $80\text{ }\mu\text{m}$  bubbles separated by  $500\text{ }\mu\text{m}$ . Thanks to a 3D displacement stage, the vertical and lateral distance between successive rows of bubbles could be pre-programmed, depending on the desired total concentration. Once enough bubbles had been created, a sample of the bubbly medium was extracted with a syringe and injected into the cell designed for the ultrasonic device. Note that this last stage destroyed the ordered state of the bubbly medium. Future work is underway to investigate the acoustic properties of these crystals of bubbles. However, in the framework of an experimental test of Foldy's model, random collections of bubbles were needed. An important issue is the stability of the sample: if the degassed gel was under-saturated with air, bubbles dissolved in a matter of minutes. To prevent this, an interval of several days was required between the degassing of the gel and the injection, so that the hair gel was saturated.

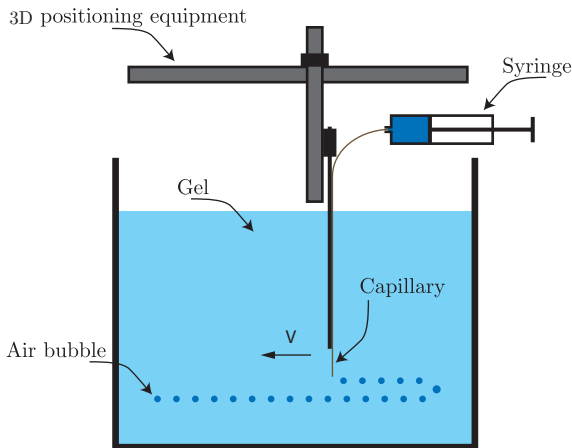


FIG. 2. Injection of bubbles: a capillary is moved in a pre-programmed pattern of positions within the gel, delivering rows of equally sized bubbles. Capillary speed  $V$  and pressure in the syringe  $P$  are the two parameters governing the bubble size and the distance between bubbles.

Once the cell was filled with the bubbly gel and sealed, it was placed on a light box and images of the bubbles were taken with a digital camera connected to a microscope ( $2\times$  magnification). Figure 3 shows examples of images taken for samples 2 and 3. The quality and contrast of the images were excellent, allowing an estimation of the diameter of the bubbles, with a resolution better than 2 pixels, by measuring the outer diameter of the dark ring appearing in the bubbles. Given the resolution of the images ( $438\text{ px/mm}$ ), the uncertainty in the radii measurements was thus  $2\text{ }\mu\text{m}$ . A dozen images, acquired at different positions within the samples, were analyzed with the “analyze particle” function of NIH ImageJ.<sup>19</sup> Furthermore, to check that the size of the bubbles remained stable during the experiment, images were taken both before and after the ultrasonic measurements. No significant evolution was noted. To avoid biased measurements of big bubbles, overlaid bubbles (such as the one marked with arrows in Fig. 3) were excluded from the size analysis. However, those bubbles were counted for the determination of the void fraction. Because the depth of field ( $> 3\text{ mm}$ ) was larger than the thickness of the cell ( $1.01\text{ mm}$ ), the volume of one image was known and the number of bubbles per unit volume could be precisely determined (note that the darker grey marks in the background of the left image in Fig. 3 are not bubbles but are likely dust or dirt on the back wall of the cell). The resulting distributions  $n(r)$  of radii  $r$ , as shown in Fig. 4, were well fitted by a lognormal distribution:

$$n(r) = \frac{n_{\text{tot}}}{\sqrt{2\pi}\epsilon r} \exp \left[ -\frac{(\ln r/r_0)^2}{2\epsilon^2} \right], \quad (2)$$

with a median radius  $r_0$ , a logarithmic standard deviation  $\epsilon$  and a total number of bubbles per unit volume of  $n_{\text{tot}}$ . Uncertainty in volume fraction was estimated from the uncertainty in the radius measurement and uncertainty in the thickness of the cell.

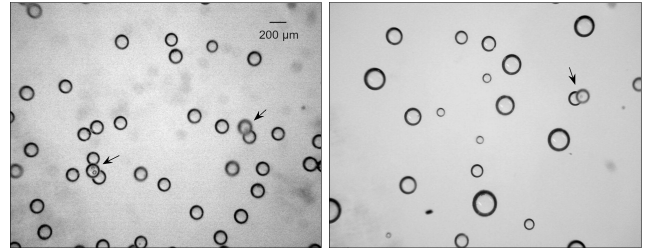


FIG. 3. Images of Sample 2 (monodisperse with a median radius of  $86\text{ }\mu\text{m}$ ) and Sample 3 (polydisperse). Arrows indicate clusters of bubbles ignored for the image analysis of the samples. The scale is the same on both images. Note that the dark spots in the background are not bubbles but dust on the back wall of the cell.

The results of the image analysis procedure for the four samples we are presenting in this article are given in Table I. The main parameter we varied was the volume fraction  $\Phi$ , which ranged from 0.15 % to almost 5 %. Samples 1, 2 and 4 were very monodisperse. Sample 3 was obtained by letting Sample 2 evolve for 24 hours.

On this long time scale, there is a clear evolution of the size distribution: larger bubbles grew at the expense of the smaller ones due to their different Laplace pressures, a process called Ostwald ripening.<sup>20</sup> The distribution of bubbles became polydisperse, as is evident from Fig. 3. Interestingly, the total volume fraction of air remained almost constant, indicating that the main mechanism of radius evolution was indeed ripening. Note that testing Foldy's model on a polydisperse sample is crucial for the goal of developing an acoustic bubble counting and sizing technique.

TABLE I. *Measured parameters of the bubble size distributions for each sample. We indicate the number  $N$  of bubbles counted for the size analysis.*

Sample	$N$	$\Phi$	$r_0$	$\epsilon$
1	50	$0.15 \pm 0.01 \%$	$81 \pm 2 \mu\text{m}$	$0.05 \pm 0.01$
2	288	$0.94 \pm 0.06 \%$	$86 \pm 2 \mu\text{m}$	$0.07 \pm 0.01$
3	186	$0.91 \pm 0.05 \%$	$100 \pm 2 \mu\text{m}$	$0.2 \pm 0.02$
4	141	$4.9 \pm 0.3 \%$	$80 \pm 2 \mu\text{m}$	$0.08 \pm 0.01$

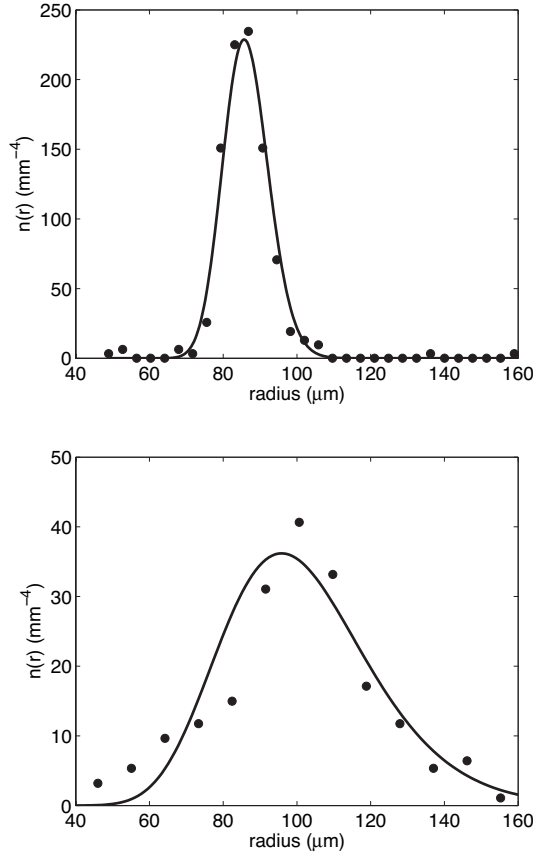


FIG. 4. *Measured radius distributions for samples 2 (top) and 3 (bottom) and best-fitted lognormal distributions.*

## B. Ultrasonic measurements

The acoustic properties of the samples were measured with the set-up of Fig. 5. In a large tank ( $60 \times 60 \times 120 \text{ cm}^3$ ) filled with reverse osmosis water, a piezoelectric transducer generated a pulse that propagated through water, traversed the sample and reached the hydrophone. The amplitude of the acoustic signal was small enough ( $\sim 10^3 \text{ Pa}$ ) to prevent non-linear response of the bubbles. Because the attenuation in the sample was large, and because the divergence of the beam was not negligible (especially at low frequencies), the use of a screen (a plastic ring wrapped with Teflon tape) was essential for reducing spurious signals. The aperture,  $D$ , of the screen had to be larger than the wavelength of the pulse, to limit diffraction effects, but smaller than the diameter of the cell. In our experiments,  $D$  was 6 cm, the cell diameter was 7 cm, and the maximum wavelength was 5 cm (for the lowest frequency of 30 kHz).

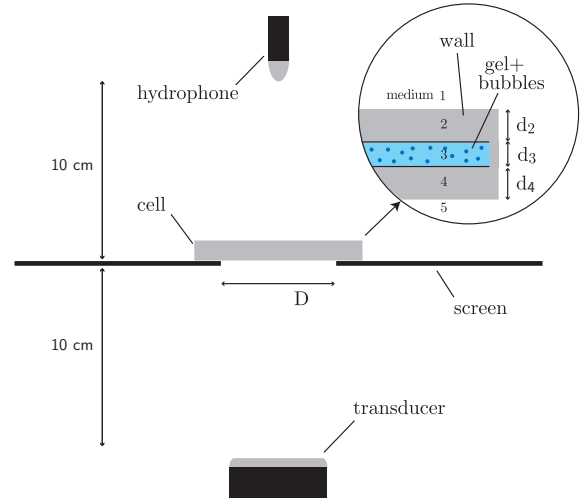


FIG. 5. *Sketch of the set-up for ultrasonic measurements. A piezoelectric transducer emits an acoustic pulse that traverses the cell containing the bubbly medium.*

Gaussian pulses, with central frequencies ranging from 30 to 400 kHz, were generated by an Arbitrary Wave Generator, and two different transducers, having central frequencies of 100 and 250 kHz, were used to cover the range of frequencies. The pulses were recorded, with a hydrophone, in two different cases: when the cell was mounted on the screen ( $s_1(t)$ ), and when the cell was absent ( $s_2(t)$ ). The signals were averaged over 100 acquisitions when the attenuation was low (for reference measurements, for example), and up to 5000 acquisitions for highly attenuated signals. Signals  $s_1(t)$  and  $s_2(t)$  were then Fourier transformed into  $S_1(\omega)$  and  $S_2(\omega)$  respectively, and  $x(\omega)$ , the ratio of the transmission with and without the cell in the path of the acoustic beam at a given angular frequency, was calculated.

The data processing was complicated by the multi-layer aspect of the cell. Indeed, the pulse did not propagate only through the bubbly medium but through

five media (see Fig. 5): water (1), plastic (2), sample (3), plastic (4) and water again (5). Following Brekhovskikh,<sup>21</sup> when a plane monochromatic wave  $\exp(ikx - i\omega t)$  propagates through the multi-layered cell, it results in a transmitted plane wave  $T\exp(ikx - i\omega t)$ , where the complex transmission  $T$  is given by:

$$\begin{aligned} T &= T_{54} \times T_{43} \times T_{32} \times T_{21} \\ &= \frac{Z_4^{\text{in}} + Z_4}{Z_4^{\text{in}} + Z_5} e^{ik_4 d_4} \times \frac{Z_3^{\text{in}} + Z_3}{Z_3^{\text{in}} + Z_4} e^{ik_3 d_3} \\ &\quad \times \frac{Z_2^{\text{in}} + Z_2}{Z_2^{\text{in}} + Z_3} e^{ik_2 d_2} \times \frac{2Z_1}{Z_1 + Z_2}, \end{aligned} \quad (3)$$

where  $d_i$  is the thickness of layer  $i$ ,  $Z_i = \rho_i \omega / k_i$ ,  $k_i$  stands for the impedance and the wave vector in medium  $i$  respectively, and  $Z_i^{\text{in}}$  is the input impedance, which is given by

$$Z_i^{\text{in}} = \frac{Z_{i-1}^{\text{in}} - iZ_i \tan(k_i d_i)}{Z_i - iZ_{i-1}^{\text{in}} \tan(k_i d_i)} Z_i \quad \text{for } i > 1. \quad (4)$$

The unknown quantity in Eq. (3) is  $k_3$ . In the following, index 3 will be omitted:  $d = d_3$ ,  $k = k_3$ . The ratio  $x(\omega)$  is related to  $T$  by:

$$x = T(k) \times e^{-ik_5(d_4 + d + d_2)}. \quad (5)$$

As  $T(k)$  is a complicated function, inversion of Eq. (5) to extract  $k$  is not analytically possible. Note that the complication not only arises from the multiple reflections existing within the system, but also from the huge attenuation of sound in the bubbly medium. Indeed, as  $\alpha$  and  $v$  are large, the wave vector in the sample  $k = \omega/v + i\alpha/2$  has a non negligible imaginary part. It follows that the phase shift of the pulse traversing the sample is not only due to propagation (as in standard cases) but also to the crossing of the interfaces 4-3 and 3-2. In other words, one cannot consider that the phase of the pulse is only dictated by the velocity in the sample, and that the amplitude of the pulse is only related to attenuation, which is a good approximation only when the term  $\exp(ikd)$  dominates in Eq. (3). To address this issue, an iterative method can be set up. Let us define  $\tilde{T}$  such that  $T = \tilde{T} \times e^{ikd}$ . Equation (5) can then be expressed as

$$e^{ikd} = x \times e^{ik_5(d_4 + d + d_2)} / \tilde{T}(k), \quad (6)$$

and with this equation we can define the iteration:

$$k^{[j+1]} = -\frac{i}{d} \ln \left( x \times e^{ik_5(d_4 + d + d_2)} / \tilde{T}(k^{[j]}) \right). \quad (7)$$

The iteration can be initialized with  $k^{[0]} = \omega/v_0$ . It was tested with other initial values of  $k^{[0]}$  and found to converge to the same final values of  $k$  even when the starting values were quite far from the final ones, indicating the robustness of the iteration procedure. Parameters of the cell are given in Table II. The uncertainty of the calculated wave vector  $k$  was evaluated by taking into account the uncertainty in the parameters (see Table II). It is worth noting that our experimental set-up is adapted only for measurements in hugely attenuating materials.

Filling the cell with water to measure the velocity of sound in water, for example, does not yield very accurate results (namely, the precision is  $0.5 \text{ mm}/\mu\text{s}$ ). The reason for this is that fully developed multiple reflections, as they exist when the cell is thin compared with the wavelength, make the inversion technique very sensitive to the exact parameters of the walls (density, velocity of sound, thickness). But when attenuation is large, the influence of multiple reflection within the cell is less pronounced, and reliable results can be obtained using a sufficiently thin sample that the transmitted pulse is of measurable amplitude.

TABLE II. *Characteristics of the cell containing the bubbly medium. The walls were made of clear polycarbonate: our measured values in this table for density and phase velocity of sound are in agreement with values in the literature.*<sup>22</sup>

$d = d_3 = 1.01 \pm 0.05 \text{ mm}$
$d_2 = d_4 = 1.63 \pm 0.01 \text{ mm}$
velocity in walls: $2.28 \pm 0.01 \text{ mm}/\mu\text{s}$
density of walls: $1.19 \pm 0.05 \text{ g/cm}^3$

### III. THEORY

In this section we give a brief description of the two models that are compared with our experimental results. Equation (1) of Foldy's original model needs to be generalized to the polydisperse case:

$$k^2 = \frac{\omega^2}{v_0^2} + \int 4\pi n(r) dr f(\omega, r). \quad (8)$$

The scattering function at angular frequency  $\omega$  for a bubble of radius  $r$  is given by:

$$f(\omega, r) = \frac{r}{(\omega_0/\omega)^2 - 1 + i(\delta^{\text{the}} + \delta^{\text{vis}} + \delta^{\text{rad}})}, \quad (9)$$

where  $\omega_0$  is the resonance frequency of the bubbles and the three  $\delta$  terms are the damping constants due to thermal, viscous and radiative losses, respectively. A detailed model of the thermodynamic behavior of the oscillating bubble is due to Prosperetti.<sup>23</sup> A complex polytropic index can be defined as a function of the radius and the frequency:

$$\kappa(\omega, r) = \frac{\gamma}{1 - 3(\gamma - 1)i \frac{D_{\text{th}}}{\omega r^2} \mathcal{B}}, \quad (10a)$$

$$\text{with } \mathcal{B} = 1 - \sqrt{-i}r \sqrt{\frac{\omega}{D_{\text{th}}}} \coth(\sqrt{-i}r \sqrt{\frac{\omega}{D_{\text{th}}}}) \quad (10b)$$

where  $\gamma$  is the ratio of specific heat capacities for air,  $D_{\text{th}}$  the thermal diffusivity of air, and where  $\sqrt{-i}$  stands for  $e^{i\frac{3\pi}{4}}$ . Moreover, because our bubbles are in a gel, we also include the effect of the shear modulus, following Alexeev and Rybak.<sup>24</sup> The resonance angular frequency and the damping constants are then:

$$\omega_0^2 = \frac{3\text{Re}(\kappa) \times (P_0 + 2A/r) + 4\mu'}{\rho r^2} - \frac{2A}{\rho r^3}, \quad (10c)$$

$$\delta^{\text{rad}} = rk_0, \quad \delta^{\text{the}} = \frac{3\text{Im}(\kappa)P_0}{\rho r^2 \omega^2}, \quad \delta^{\text{vis}} = \frac{4\mu''}{\rho r^2 \omega^2}, \quad (10d)$$

where  $k_0 = \omega/v_0$  is the wave vector in the gel,  $\mu = \mu' + i\mu''$  the shear modulus of the gel,  $A$  its surface tension,  $\rho$  its density and  $P_0$  the ambient pressure. Values of the physical parameters we used for evaluating the equations are given in Table III. For the surface tension of the gel, we assumed it to be the same value as for water, which is probably an over-estimation. In any case, surface tension effects are almost negligible for the bubble size considered in our experiments. Estimation of the shear modulus was obtained via standard measurements with a rheometer, which gave the frequency dependence of  $\mu$  up to 100 kHz. Extrapolation of this frequency dependence to 400 kHz is certainly a crude approximation. However, as  $\mu'$  remains small compared with atmospheric pressure, its influence on the resonance frequencies of bubbles is weak (see Eq. (10c)), a fact that we experimentally checked by measuring the resonance frequency of individual bubbles in gel. Moreover, because thermal and radiative losses dominate, the effect of  $\mu''$  is not crucial: it changes, by 20 % at most, the maximum of the attenuation of sound in the bubbly medium. As a result, the acoustic behavior of the bubbly gel is expected to be almost identical to what it would be for bubbly water.

TABLE III. Values of the physical parameters used for the model. The phase velocity of sound in the gel was measured by propagating an acoustic pulse through a known thickness of gel. Shear moduli were obtained by standard rheological techniques. Density was measured with a specific gravity bottle.

$v_0 = 1.49 \text{ mm}/\mu\text{s}$	$D_{\text{th}} = 2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
$\gamma = 1.4$	$P_0 = 10^5 \text{ Pa}$
$A = 70 \text{ mJ}/\text{m}^2$	$\rho = 1 \text{ g}/\text{cm}^3$
$\mu' = 60 \text{ Pa} \times (\omega/2\pi\text{Hz})^{0.1}$	
$\mu'' = 13 \text{ Pa} \times (\omega/2\pi\text{Hz})^{0.5}$	

In 1999, Henry proposed a diagrammatic approach for the problem of propagation in a bubbly medium.<sup>12</sup> His result has a simple interpretation: it amounts to considering that the bubble does not radiate in the pure liquid, but in the effective medium. As a consequence, the radiative damping term in Eq. (10d) has to be modified, namely,  $k_0$  in the formula of  $\delta^{\text{rad}}$  has to be substituted by the effective wave vector  $k$ . We calculated Henry's predictions by an iterative process, with twenty iterations. Note that Kargl, in 2002, obtained the same expression as Henry, but with a different approach to the problem.<sup>13</sup>

#### IV. EXPERIMENTAL RESULTS

We present the experimental measurements of the attenuation and the phase velocity in four different samples of bubbly gels, with the parameters that characterize the bubble size distributions being given in Table I. For each sample, a comparison with Foldy's and Henry's predictions is performed.

##### A. Low volume fraction

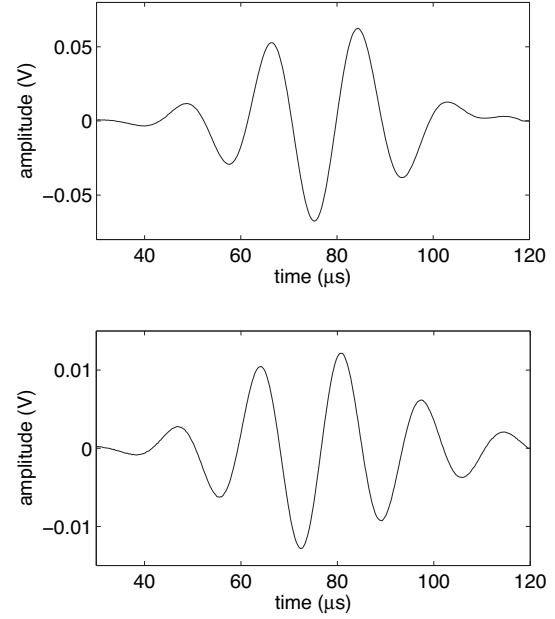


FIG. 6. Top: the reference pulse for a central frequency of 0.05 MHz. Bottom: the corresponding pulse transmitted through Sample 1.

The first sample we investigated had a volume fraction of 0.15 % with a monodisperse distribution of bubbles. Figure 6 compares an example of the pulse transmitted through the sample with the reference pulse through water, for a Gaussian pulse centered at 50 kHz. To measure the phase velocity and attenuation as a function of frequency, the Fourier transforms of the signals were computed. Figure 7 shows the magnitude of the Fourier transforms (top plot) and the difference between the phase of the reference signal and the phase of the sample signal (bottom plot), as functions of frequency. The dispersive character of the bubbly medium is clearly visible: both the magnitude and the phase changed significantly with frequency, particularly around 40 kHz, which is the resonance frequency of the bubbles.

From these calculations, the ratio  $x$  defined in section II.B was calculated and the attenuation and phase velocity were then determined using the procedure that was also described in this section (section II.B). Figure 8 displays the attenuation and velocity as a function of frequency for Sample 1. It is worth emphasizing that the entire regime of high attenuation is covered. For comparison, Wilson *et al.*<sup>4</sup> measured only the first part of the peak, and this was done for samples with a smaller concentration of bubbles. The error bars in the plots were calculated from the uncertainties in the different parameters needed for the inversion procedure (see Table II). Error bars are bigger when the phase velocity is large, because high values of velocity required measurement of small phase shifts. Note that the overlap in frequency between the different runs of data (with different Gaussian



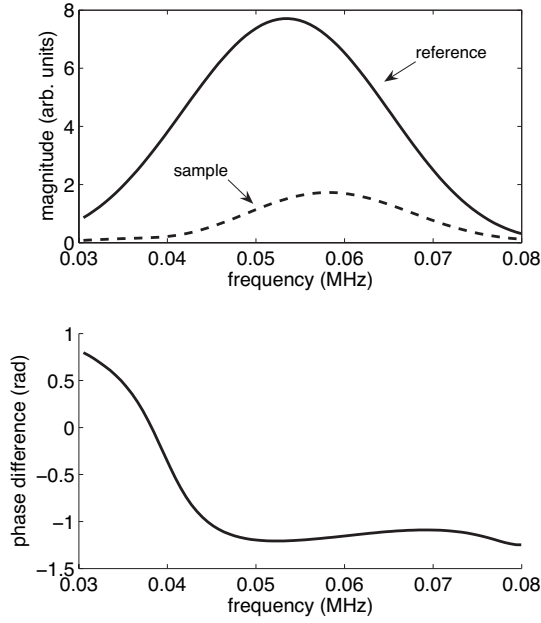


FIG. 7. Top: magnitude of the Fourier transform of the reference signal of Fig. 6 (solid line) and of the sample signal of Fig. 6 (dashed line). Bottom: the phase of the Fourier transform of the reference signal minus the phase of the Fourier transform of the sample signal.

pulses) is satisfactory: one obtains more or less smooth curves. When differences are visible, they give indications about the uncertainty of the measurement.

Figure 8 also gives the predictions of Foldy's and Henyey's models for the bubble size distribution that was measured in the sample. In other words, there are no adjustable parameters in this treatment. For attenuation, there is good agreement with Foldy's model. A huge sharp peak of attenuation, due to resonance of the bubbles, is followed by a high attenuation regime (up to 200 kHz). The Henyey result (in dashed line) is not very different from Foldy's predictions for this sample, in which the concentration of bubbles is low. Nevertheless, the position of the attenuation peak is distinct from one model to the other, and Foldy's peak position is in better agreement with the measurements. Measurements of the velocity are more difficult to interpret. If only the rising and the decrease of the peak of velocity are examined, the agreement between Foldy's prediction and the experimental values is excellent. On the other hand, measurements from 100 kHz to 200 kHz display a large discrepancy with Foldy's model (note the logarithmic scale).

This discrepancy in the velocity may be a consequence of performing the experiments on well characterized samples with fixed distributions of bubbles. Indeed, because our bubbles are trapped in the gel matrix – allowing us to take good and reliable images of them – our measurements are made with a particular realization, whereas the models calculate the properties of an average medium. In practice, it means that the signal acquired after passage

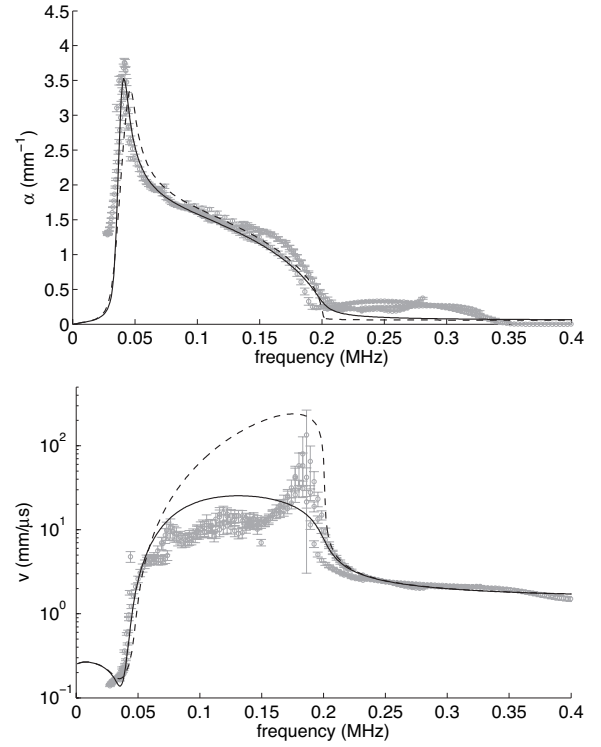


FIG. 8. Attenuation and velocity measured in Sample 1 ( $\Phi = 0.15\%$ ,  $r_0 = 81\mu\text{m}$ ,  $\epsilon = 0.05$ ). Predictions from the Foldy (continuous lines) and Henyey (dashed lines) models are shown.

through Sample 1 might be different from that measured through another sample with the same concentration of bubbles of the same size, but with bubbles in different positions. The signal obtained by averaging over the different configurations of the sample is usually called the coherent signal. The other part, which is related to a particular configuration, is called the incoherent signal. In our experiments, the incoherent part is expected to be very small, because the acoustic wavelength is so large compared with the typical distance between bubbles. It is therefore usually considered that the exact positions of the scatterers are not of crucial importance. However, a slight difference can exist and become non-negligible when one has to measure high values of  $\alpha$  and  $v$ . Indeed, the relative magnitude of the incoherent part will increase as the coherent part is attenuated.<sup>25</sup> Furthermore, high velocities necessitate the measurement of small phase shifts, which may become blurred by the incoherent signal. This effect may explain the discrepancy between the models and our measurements of velocities larger than  $10\text{ mm}/\mu\text{s}$ .

## B. Intermediate volume fraction

The volume fraction of bubbles in Sample 2 was almost 1%. As displayed in Fig. 9, the measured attenuation shows a similar frequency dependence to that of Sample 1. The sharp peak of large attenuation is still

at the same position (as expected, since the bubbles had the same radius), but of significantly larger magnitude. It is also apparent that the regime of large attenuation is broader:  $\alpha$  is still larger than  $2 \text{ mm}^{-1}$  at  $0.4 \text{ MHz}$ . The comparison with Foldy's prediction is not as good as for Sample 1. Although the magnitude of the sharp peak is well depicted, its position is not perfect. Furthermore, Foldy predicts an attenuation on the plateau which is 10 % higher than what is measured. Henyey's model is in even worse agreement with the measurements. As for the velocity, its initial low frequency rise is well depicted by Foldy's model. On the other hand, above  $100 \text{ kHz}$ , agreement deteriorates, and Foldy's model predicts a larger velocity of sound than is found in the experiment. Velocity predictions from Henyey's model are in worse agreement.

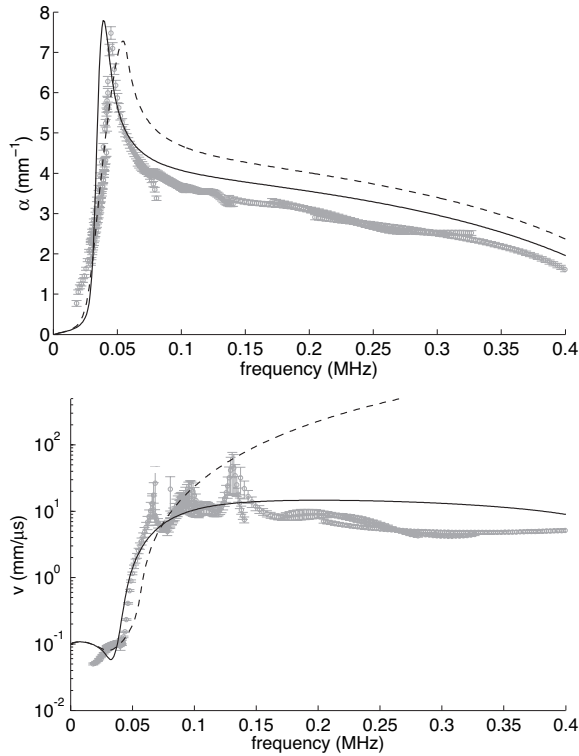


FIG. 9. Attenuation and velocity measured in Sample 2 ( $\Phi = 0.94\%$ ,  $r_0 = 86 \mu\text{m}$ ,  $\epsilon = 0.07$ ). Predictions from the Foldy (continuous lines) and Henyey (dashed lines) models are shown.

### C. Effect of polydispersity

Sample 3 had almost the same concentration of bubbles as Sample 2, but with a much more polydisperse distribution (see Fig. 4). Such well defined samples provide a good opportunity to test the accuracy of ultrasonic measurements for obtaining details about the size distribution of bubbles in a sample. Comparison of Figs. 9 and 10 shows that a polydisperse sample can clearly be distinguished from a monodisperse one: the sharp peak

in attenuation is shifted to a lower frequency and the general level of attenuation is substantially lower. The effect on velocity is less dramatic, the only clear difference being a less pronounced slope around bubble resonance for the polydisperse sample. All these features are well depicted by Foldy's model, which is again in better agreement with the experimental data than Henyey's model.

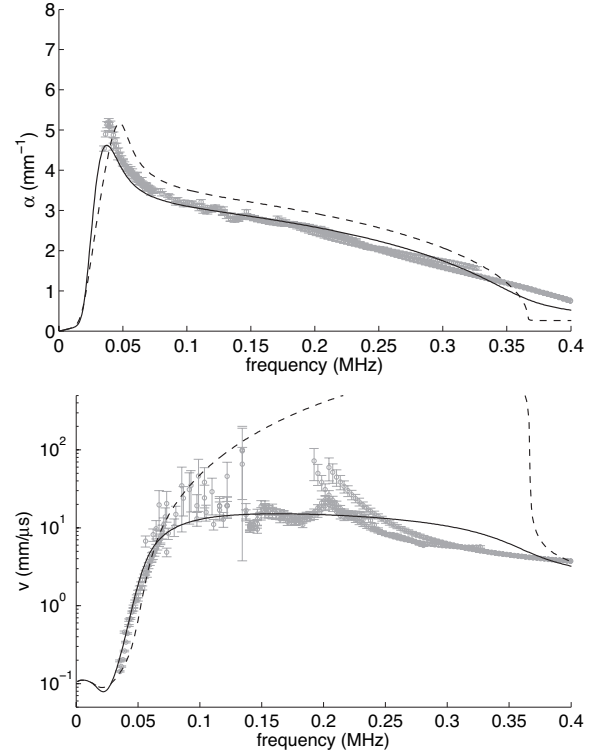


FIG. 10. Attenuation and velocity measured in Sample 3 ( $\Phi = 0.91\%$ ,  $r_0 = 100 \mu\text{m}$ ,  $\epsilon = 0.2$ ). Predictions from the Foldy (continuous lines) and Henyey (dashed lines) models are shown.

### D. High concentration

With the high concentration (almost 5 %) of monodisperse bubbles in Sample 4, we observed high-order multiple scattering. Figure 11 gives an example of the signal transmitted through Sample 4 (bottom plot) for a pulse of central frequency  $0.25 \text{ MHz}$ . For comparison, the pulses at the same frequency propagating through only water, as well as through Sample 1, are presented in Fig. 11 (top plot and middle plot respectively). It is clear from the top and bottom pulses in Fig. 11 that Sample 4 highly attenuates sound (by a factor 500), and also gives rise to high-order multiple scattering that is manifest as a tail of oscillations that follow the initial arrival of the signal.<sup>25</sup> By contrast, the pulses through the other samples, which have lower bubble concentrations, show no measurable signs of high-order multiple scattering (e.g., see middle plot in Fig. 11). To check that this multiply

scattered signal is due to the bubbly sample – and not to reflections in the water tank or around the screen – we also measured the transmitted signal when the aperture of the screen was closed (grey curve in Fig. 11). The pulse that has travelled through the bubbly medium is clearly much larger than this background signal, confirming the presence of high-order multiple scattering and revealing that incoherent scattering is competing with the coherent field at this high concentration of bubbles.

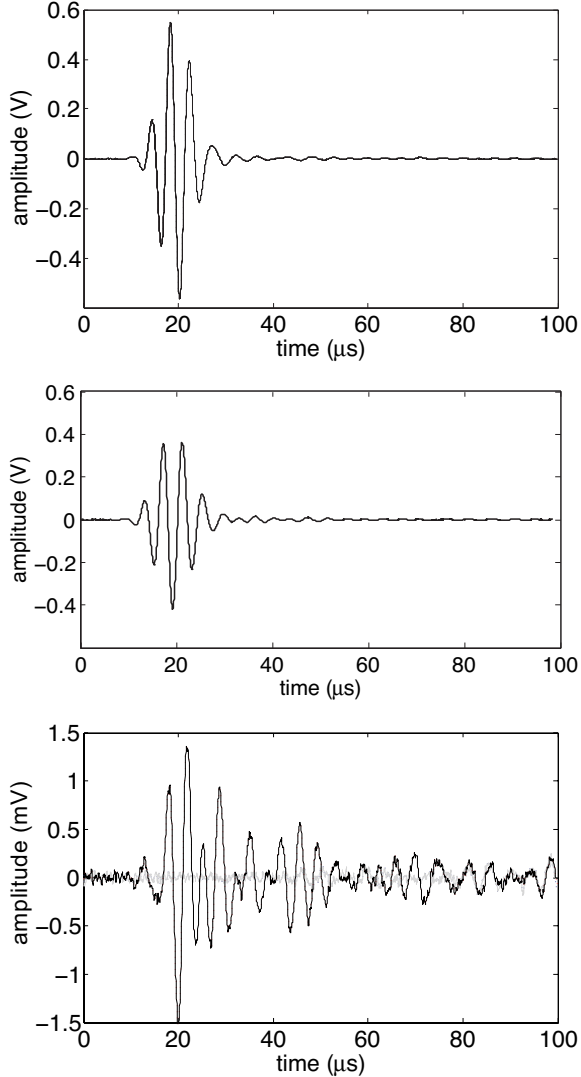


FIG. 11. *Top: the reference pulse for a central frequency of 0.25 MHz. Middle: the corresponding pulse traversing Sample 1 ( $\Phi = 0.15\%$ ,  $r_0 = 81 \mu\text{m}$ ,  $\epsilon = 0.05$ ). Bottom: the corresponding pulse traversing Sample 4 ( $\Phi = 4.9\%$ ,  $r_0 = 80 \mu\text{m}$ ,  $\epsilon = 0.08$ ). Note factor of  $10^3$  reduction in amplitude. Data in light grey correspond to the signal acquired when the aperture of the screen is closed.*

For low frequencies, the presence of high-order multiple scattering was much less clear. Indeed, because the screen is less opaque to low frequency ultrasound, and because Sample 4 strongly attenuates the incident pulse, only the very first part of the acquired signal was dif-

ferent when the pulse was going through the sample or through the screen. We found that 0.15 MHz was the lowest frequency at which the existence of high-order multiple scattering could be clearly seen.

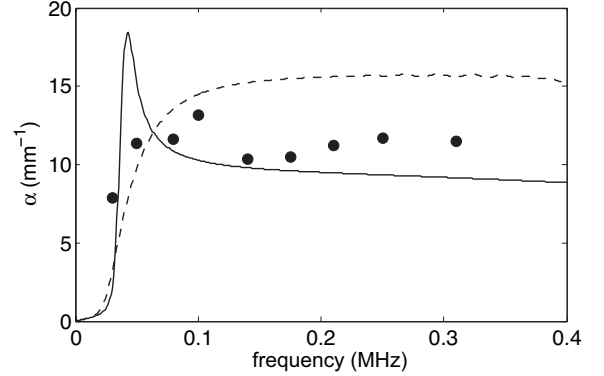


FIG. 12. *Approximate measurements of the attenuation in Sample 4, and comparison with the Foldy (solid line) and Henryey (dashed line) models.*

With a signal such as the one of Fig. 11, the analysis described in section II.B cannot be used because the coherent pulse cannot be clearly distinguished from the total measured field. However, a crude estimation of the attenuation can be performed by taking only the 3 first cycles of the signal, which likely consist mostly of the coherent component of the field, and by considering that the loss in transmission in Eq. (3) is dominated by  $\exp(-\alpha d/2)$ . The result of such a procedure is given in Fig. 12. The order of magnitude of the result is comparable to that of the theoretical models. But, due to the crudeness of the measurements, it is not possible to discern which model is better at predicting experimental results for samples with such high concentrations of bubbles.

## V. CONCLUSIONS

We have measured the phase velocity and the attenuation in monodisperse bubbly media over a large range of frequencies that include the resonance frequency of the bubbles. For concentrations of 0.15% and 1%, we find that Foldy's model gives an imperfect but satisfactory description of the attenuation and phase velocity in our samples. In particular, the attenuation is well predicted by Foldy's model, but the phase velocity is overestimated for frequencies corresponding to the higher frequency part of the large attenuation regime. It is important to note that this range of frequencies over which the agreement between theory and experiment deteriorates did not include the resonant frequencies of the bubbles. This is a surprising result, as there is a general consensus in the literature about the inability of Foldy's model to describe the propagation of sound in a bubbly liquid in the presence of resonant effects. In that sense, our results confirm what Wilson *et al.*<sup>4</sup> obtained, but with better characterized samples that contain higher concentrations of bubbles.



However, the question of knowing whether Foldy's model needs corrections or not, and what this correction should be, is still open. Indeed, our measurements with a small number of quenched samples did not allow us to unambiguously separate the coherent part of the signal from the incoherent scattering, even though each sample contained a large number of bubbles; thus, for this range of bubble concentrations, a definitive comparison of experimental data with theories for ensemble average properties, such as Foldy's or Henry's models, must await additional experiments with a larger number of well characterized samples. Also, our samples were thin, and, even though the samples were sufficiently dilute that significant short range correlations in the positions of the bubbles due to the sample boundaries are unlikely, most of the bubbles were still near a boundary, and therefore may not have experienced the same effective field as in the idealized infinite sample assumed in the models. In future work, this question will be addressed through measurements on samples of different thickness, as has been done for other strongly scattering media, where the ability of effective medium theories to accurately describe velocity and attenuation data in thin samples has been demonstrated.<sup>26,27</sup> Despite the limited number of samples investigated in the current experiments, it is still interesting to note that better agreement with the data was found with Foldy's model than with Henry's model.

Nevertheless, from a practical point of view, the results reported in this article are encouraging for achieving the objective of measuring the bubble size distribution in a medium using ultrasonic techniques. In many such applications, the bubble sizes in a particular sample are needed. For concentrations of bubbles up to 1 %, measuring the position, height and shape of the peak of attenuation should give enough information to determine the distribution of bubble radii using Foldy's model. A demonstration of the feasibility of this approach was made with Samples 2 and 3, whose different polydispersity could be differentiated using attenuation measurements. Note that for higher volume fractions, when high-order multiple scattering is directly observable, it becomes more difficult to measure the velocity and attenuation; however, in this regime, useful information can still be obtained with techniques based on Diffusing Acoustic Wave Spectroscopy,<sup>28,29</sup> which can be applied to investigate the dynamics of the bubbles (*e.g.*, Ostwald ripening) with excellent sensitivity.

## Acknowledgments

Support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada is gratefully acknowledged.

- <sup>1</sup> A. B. Wood, *A Textbook of sound* (Bell, London) (1932).
- <sup>2</sup> F. S. Crawford, "The hot chocolate effect", *Am. J. Phys.* **50**, 398–404 (1982).
- <sup>3</sup> M. Nicholas, R. A. Roy, L. A. Crum, H. Oğuz, and A. Prosperetti, "Sound emissions by a laboratory bubble cloud", *J. Acoust. Soc. Am.* **95**, 3171–3182 (1994).

- <sup>4</sup> P. S. Wilson, R. A. Roy, and W. M. Carey, "Phase speed and attenuation in bubbly liquids inferred from impedance measurements near individual bubble resonance frequency", *J. Acoust. Soc. Am.* **117**, 1895–1910 (2005).
- <sup>5</sup> L. L. Foldy, "The multiple scattering of waves", *Physical Review* **67**, 107–119 (1945).
- <sup>6</sup> E. Silberman, "Sound velocity and attenuation in bubbly mixture measured in standing wave tubes", *J. Acoust. Soc. Am.* **29**, 925–933 (1957).
- <sup>7</sup> K. W. Commander and A. Prosperetti, "Linear pressure waves in bubbly liquids : comparison between theory and experiments", *J. Acoust. Soc. Am.* **85**, 732–746 (1989).
- <sup>8</sup> P. S. Wilson, R. A. Roy, and W. M. Carey, "An improved water-filled impedance tube", *J. Acoust. Soc. Am.* **113**, 3245–3252 (2003).
- <sup>9</sup> P. C. Waterman and R. Truell, "Multiple scattering of waves", *J. Math Phys.* **2**, 512–537 (1961).
- <sup>10</sup> C. Feuillade, "The attenuation and dispersion of sound in water containing multiply interacting bubbles", *J. Acoust. Soc. Am.* **99**, 3412–3430 (1996).
- <sup>11</sup> Z. Ye and L. Ding, "Acoustic dispersion and attenuation relations in bubbly mixture", *J. Acoust. Soc. Am.* **98**, 1629–1635 (1995).
- <sup>12</sup> F. S. Henry, "Corrections to Foldy's effective medium theory for propagation in bubble clouds and other collections of very small scatterers", *J. Acoust. Soc. Am.* **105**, 2149–2154 (1999).
- <sup>13</sup> S. G. Kargl, "Effective medium approach to linear acoustics in bubbly liquids", *J. Acoust. Soc. Am.* **111**, 168–173 (2002).
- <sup>14</sup> Feuillade's model gives good agreement with experimental results, but it introduces an *ad hoc* adjustable parameter without a clear justification.
- <sup>15</sup> R. Duraiswami and S. Prabhukumar, "Bubble counting using an inverse acoustic scattering method", *J. Acoust. Soc. Am.* **104**, 2699–2717 (1998).
- <sup>16</sup> V. Leroy, Y. Fan, A. L. Strybulevych, G. G. Bellido, J. H. Page, and M. G. Scanlon, "Investigating the bubble size distribution in dough using ultrasound", in *Bubbles in Food 2: Novelty, Health and Luxury*, edited by G. M. Campbell, M. G. Scanlon, and D. L. Pyle (Eagan Press) (2008).
- <sup>17</sup> F. van der Biest, "Diffusion multiple et renversement du temps ultrasonore dans des milieux périodiques et désordonnés (multiple scattering and time reversal of acoustic waves in periodic and disordered media)", Ph.D. thesis, Université Paris 7 (2005).
- <sup>18</sup> Dep, sport endurance gel, made in USA by Henkel corporation.
- <sup>19</sup> M. D. Abramoff, P. J. Magelhaes, and S. J. Ram, "Image processing with imageJ", *Biophotonics International* **11**, 36–42 (2004).
- <sup>20</sup> R. Ettelaie, E. Dickinson, Z. Du, and B. S. Murray, "Disproportionation of clustered protein-stabilized bubbles at planar air-water interfaces", *J. Colloid Interface Sci.* **263**, 47–58 (2003).
- <sup>21</sup> L. M. Brekhovskikh, *Waves in layered media* (Academic press, New York) (1960).
- <sup>22</sup> A. R. Selfridge, "Approximate material properties in isotropic materials", *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics* **SU-32**, 381–394 (1985).
- <sup>23</sup> A. Prosperetti, "Thermal effects and damping mechanisms in the forced radial oscillations of gas bubbles in liquids", *J. Acoust. Soc. Am.* **61**, 17–27 (1977).
- <sup>24</sup> V. N. Alekseev and S. A. Rybak, "Gas bubble oscillations in elastic media", *Acoustical Physics* **45**, 535–540 (1999).

- <sup>25</sup> Z. Q. Zhang, I. P. Jones, H. P. Schriemer, J. H. Page, D. Weitz, and P. Sheng, “Wave transport in random media: the ballistic to diffusive transition”, *Phys. Rev. E* **60**, 4843 (1999).
- <sup>26</sup> J. H. Page, P. Sheng, H. P. Schriemer, I. Jones, X. Jing, and D. A. Weitz, “Group velocity in strongly scattering media”, *Science* **271**, 634–637 (1996).
- <sup>27</sup> M. L. Cowan, K. Beaty, J. H. Page, Z. Liu, and P. Sheng, “Group velocity of acoustic waves in strongly scattering media: dependence on the volume fraction of scatterers”, *Phys. Rev. E* **58**, 6626–6636 (1998).
- <sup>28</sup> M. L. Cowan, J. H. Page, and D. A. Weitz, “Velocity fluctuations in fluidized suspensions probed by ultrasonic correlation spectroscopy”, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 453–456 (2000).
- <sup>29</sup> M. L. Cowan, I. P. Jones, J. H. Page, and D. A. Weitz, “Diffusing acoustic wave spectroscopy”, *Phys. Rev. E* **65**, 066605 (2002).

## 2.2 Bulles dans une pâte à pain [Article 2]

Les bulles sont des ingrédients très prisés par l'industrie agro-alimentaire. Pas uniquement parce qu'elles permettent d'augmenter le volume des aliments à peu de frais. Leur contribution à la texture des produits est également primordiale ; que l'on songe par exemple au peu d'attrait d'un pain compact, sans bulles. C'est justement sur le pain que se penchait notre étude, à l'université du Manitoba. La fabrication du pain peut être vue comme une succession d'étapes d'aération [29], à commencer par le pétrissage qui permet d'introduire les premières bulles qui seront nécessaires à la levée de la pâte sous l'effet des levures. Connaître la distribution en taille des bulles lors du pétrissage présente donc un grand intérêt en boulangerie industrielle, puisque cela permet de s'assurer, très tôt dans la production, que la texture finale du produit sera conforme à ce qu'on attend. C'est à ce besoin que nous souhaitions répondre en développant une technique ultrasonore.

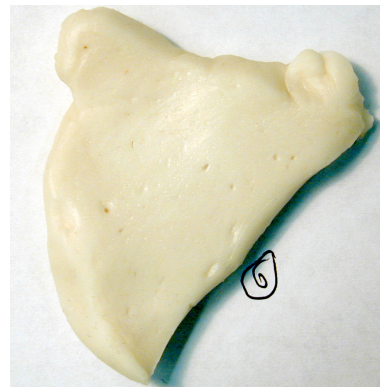


FIGURE 2.5 – Après pétrissage, environ 10% du volume d'une pâte à pain est sous forme de bulles d'air. Peut-on déterminer la taille de ces bulles grâce aux ultrasons ?

Devant le succès du modèle de Foldy pour décrire la propagation acoustique dans un milieu bulleux, y compris à résonance, nous avons développé la mesure de l'atténuation des ultrasons pour déterminer la taille des bulles dans un milieu visco-élastique. Avant de passer à la pâte à pain, nous avons fait des essais avec un gel d'agar, un premier pas vers l'agro-alimentaire puisque l'agar est comestible. C'est aussi un système plus simple parce que transparent, ce qui permet de mesurer la tailles des bulles par une méthode optique, et peu élastique, ce qui le rend rhéologiquement plus proche des liquides et du fluide à seuil pour lesquels Foldy s'était avéré utilisable. Nos mesures, publiées dans la revue *Soft Matter* [30], ont confirmé la validité de la méthode. Nous avons en outre montré que la méthode acoustique permettait de caractériser un milieu contenant à la fois des bulles et des billes solides, impossibles à discriminer optiquement.

L'application de la méthode à la pâte à pain a connu moins de succès, comme rapporté dans l'article reproduit ci-dessous, paru dans les actes de la conférence "Bubbles in Food 2" [31]. Le principal résultat est dans la figure 6 : on mesure bien des pics d'atténuation et de vitesse, mais si l'on ajuste les données en appliquant le modèle de Foldy, on trouve des bulles bien plus petites que celles mesurées par rayons X.

Pas moins de 7 hypothèses ont été envisagées pour expliquer ce désaccord :

**H1- Foldy a raison.** Les bulles dans la pâte soumise aux ultrasons sont effectivement plus petites, parce que la mesure implique d'écraser la pâte entre deux plaques (voir la figure 3 de l'article 2), afin d'avoir une épaisseur contrôlée. En outre, les mesures de tomographie ont été faites sur une pâte, certes obtenue avec la même recette, mais à une date différente et en un lieu différent (Calgary).

**H2-  $\Phi$  est trop élevé.** La pâte à pain contient une fraction volumique d'air importante,

de l'ordre de 12% dans l'article ci-dessous. On peut se demander si un modèle de milieu dilué peut encore s'appliquer.

**H3- On ne mesure pas bien  $\mu$ .** Pour appliquer le modèle de Foldy, il faut connaître le module de cisaillement du milieu hôte, qui a un effet sur la fréquence de résonance des bulles. Or ce module n'est pas bien connu à des fréquences de l'ordre du MHz, les méthodes standards de rhéologie étant limitées à 100 Hz. Dans l'étude rapportée ci-dessous, nous avons extrapolé les lois de puissance trouvées à basse fréquence, ce qui paraît audacieux.

**H4- Le  $\mu$  qu'il faut utiliser n'est pas celui qu'on mesure macroscopiquement.** Les bulles ressentent un module de cisaillement local, qui pourrait être différent du module global mesuré par d'autres techniques. En effet, la pâte à pain est un milieu complexe, dont on sonde généralement la rhéologie à l'échelle macroscopique. Les bulles, elles, voient un milieu à l'échelle de la centaine de microns. Il ne paraît pas inconcevable que le module de cisaillement local, à l'échelle de la bulle, soit différent du module global. Par ailleurs, la pâte à pain contient des granules d'amidon (de quelques dizaines de microns de rayon) susceptibles d'influer sur la rhéologie locale, ainsi que sur la réponse ultrasonore du milieu.

**H5- Le milieu est trop élastique pour que Foldy s'applique.** On a supposé que le seul effet de la visco-élasticité était de changer la réponse des bulles, sans interaction entre les ondes longitudinales et les ondes transverses. Cela simplifie énormément les calculs puisqu'on évite ainsi d'avoir à considérer des effets de conversion de mode. Étant donné la grande séparation des longueurs d'ondes longitudinales et transverses, l'approximation paraît légitime. Dans les cas du fluide à seuil et du gel d'agar, le module de cisaillement était très faible ( $\mu = 0$  et 50 kPa respectivement). Mais pour la pâte à pain, on trouve plutôt  $\mu = 3$  MPa (à 2 MHz) et l'approximation est peut-être moins légitime. Un modèle plus complet, prenant plus proprement en compte les effets élastiques, apporterait alors une solution à notre problème.

**H6- La polydispersité est trop forte.** Le modèle de Foldy n'a pas été testé pour des polydispersités aussi extrêmes que celle à laquelle on a affaire dans la pâte à pain. Les mesures par rayon X montrent en effet une distribution lognormale avec une largeur de  $\epsilon = 0.6$ , alors que nos tests dans le fluide à seuil étaient pour  $\epsilon = 0.2$  au plus. La prise en compte de la polydispersité repose sur un simple argument de principe de superposition, qui paraît légitime en régime linéaire. Mais on pourrait imaginer que des couplages subtils existent entre bulles de rayons très différents.

**H7- Les bulles ne sont pas réparties de façon homogène dans la pâte.** Une hypothèse de Foldy est que l'assemblée de diffuseurs peut être décrite comme un gaz parfait, sans corrélation sur leurs positions. On peut imaginer que dans la pâte, les bulles ne soient pas complètement désordonnées, mais qu'il y ait une structuration. Les corrélations de position sont connues pour avoir un effet sur la propagation effective dans le milieu. Le modèle de Keller propose une extension de Foldy pour en tenir compte [32].

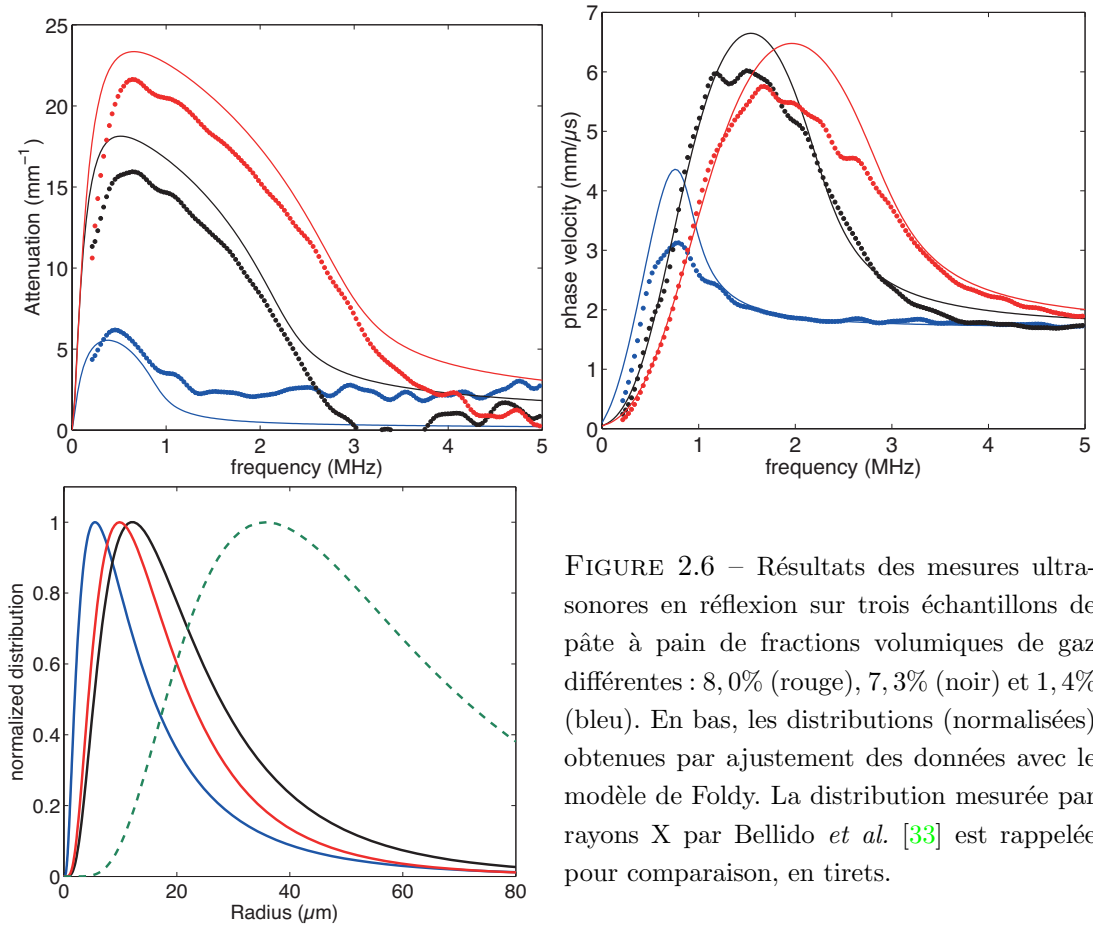


FIGURE 2.6 – Résultats des mesures ultrasonores en réflexion sur trois échantillons de pâte à pain de fractions volumiques de gaz différentes : 8,0% (rouge), 7,3% (noir) et 1,4% (bleu). En bas, les distributions (normalisées) obtenues par ajustement des données avec le modèle de Foldy. La distribution mesurée par rayons X par Bellido *et al.* [33] est rappelée pour comparaison, en tirets.

Les trois premières hypothèses ont pu être évacuées assez rapidement. **H1-** En passant à une mesure ultrasonore par réflexion, il n'était plus nécessaire d'écraser la pâte, et pourtant le désaccord persistait (voir figure 2.6). **H2-** En pétrissant la pâte sous pression réduite, on peut entraîner moins d'air tout en gardant la taille des bulles à peu près constante (voir figure 2.7) ; on vérifie ainsi que même pour  $\Phi = 1,4\%$ , appliquer le modèle de Foldy conduit à une sous-estimation du rayon des bulles (voir figure 2.6). **H3-** Nous avons fait des mesures de vitesse d'ondes de cisaillement à haute fréquence dans la pâte, ce qui a confirmé les ordres de grandeur pour le module de cisaillement [34].

On verra que les hypothèses **H4** et **H5** sont mises à mal par les résultats présentés dans la partie 2.3. En effet, les mesures acoustiques avec un élastomère bulleux, pour lequel la question de la micro-rhéologie est moins pertinente, montrent un désaccord semblable à celui observé avec la pâte à pain. Par ailleurs, les résultats du chapitre 3 montrent que dans le cas d'une assemblée monodisperse de bulles avec une corrélation de positions bien contrôlée, on reproduit très bien les comportements acoustiques observés dans un élastomère d'élasticité élevé. Cela valide notre façon simple de tenir compte de l'élasticité. Il reste donc les hypothèses concernant la polydispersité et la corrélation, qui sont l'objet de la troisième partie de ce chapitre.

Notons que même si la technique ne permet pas (encore) de déterminer la taille des bulles dans une pâte à pain, mesurer l'atténuation et la vitesse des ultrasons reste intéressant.

Connaître la fréquence du pic d'atténuation en fonction du temps, par exemple, apporte une information (qualitative) sur la dynamique de grossissement des bulles dans la pâte.

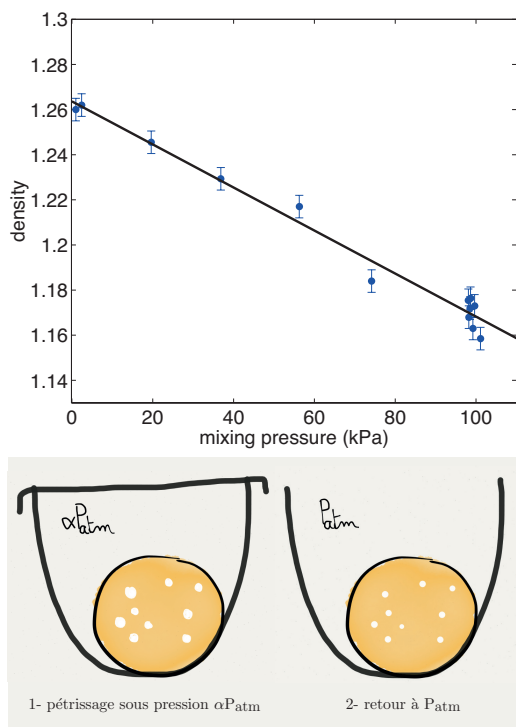


FIGURE 2.7 – On peut faire varier le volume de gaz incorporé dans la pâte à pain en pétrissant sous différentes conditions de pression. Comme attendu, pétrir sous atmosphère réduite augmente la densité de la pâte obtenue, comme le montre la courbe ci-contre. Ce qui est moins intuitif, c'est que la taille des bulles ne changent pas, contrairement à ce que suggère le dessin. Campbell *et al.* ont montré que c'est le nombre de bulles qui était réduit par un pétrissage sous atmosphère réduite [29]. Cela s'explique par l'apparition, sous l'effet du pétrissage, d'une contrainte normale  $\tau$  dans le fluide visco-elastique qu'est la pâte. On a alors un volume final moyen des bulles donné par  $v_{\text{fin}} = (\alpha + \tau/P_{\text{atm}})v$ , où  $v$  est le volume moyen sélectionné par la physique du processus de fragmentation. Pour une contrainte normale suffisamment grande, on trouve effectivement que  $\alpha$  joue peu sur  $v_{\text{fin}}$ . En observant la relaxation des bulles après pétrissage, Campbell *et al.* ont mesuré  $\tau = 1,65$  bars pour leur pâte. Avec une telle valeur, on prévoit que passer de  $P_{\text{atm}}$  à  $P_{\text{atm}}/5$  conduit à une réduction de moins de 12% du rayon des bulles.

### Investigating the bubble size distribution in dough using ultrasound

Valentin Leroy (1), Yuanzhong Fan(1), A.L. Strybulevych(1), G.G. Bellido(2), J.H. Page(1), M.G. Scanlon(2)

(1) Department of Physics & Astronomy (2) Department of Food Science, University of Manitoba, Winnipeg, Canada

#### Abstract

The feasibility of using ultrasound to investigate the bubble size distribution in dough is addressed. A model for the propagation of ultrasound in a bubbly viscoelastic medium is presented and its relevant parameters are discussed, with a particular emphasis on how changes in the shear modulus and the bubble size distribution affect the ultrasonic velocity and attenuation. The model, experimentally verified with two well-characterized bubbly gels, is used to estimate the mean radius and distribution of bubbles in a sample of dough.

#### 1. Introduction

Air bubbles incorporated in dough during mixing are fundamental to breadmaking. They are crucial for the final texture of the bread (Campbell et al., 1998) and might even substantially affect the rheology of the dough (Chin et al., 2005). Even though the total volume fraction of gas is easy to determine from density measurements, the precise size distribution of bubbles in the dough is much more difficult to obtain. A technique consisting of analysing thin slices of frozen dough was used by Campbell et al. (1991) to determine bubble size distributions, and one can also obtain a detailed picture of the bubbles in the dough by x-ray tomography (Babin et al., 2005; Bellido et al., 2006). However, both methods are time consuming and impossible to use in a process plant.

A promising new approach for analyzing bubble size distributions is to use ultrasound (Elmehdi et al., 2005). The presence of bubbles in a liquid is known to dramatically modify the propagation of ultrasonic waves. In particular, the velocity and attenuation as a function of frequency exhibit peaks whose shape and position are related to the distribution of bubble radii (Commander and Prosperetti, 1989). For Newtonian liquids with a volume fraction of gas bubbles much lower than 1%, a reliable model exists, and it can therefore be used to extract the dispersion in bubble sizes from ultrasonic measurements (Duraishwami et al., 1998). Most bubbly materials of practical interest, however, are viscoelastic and have a concentration of bubbles significantly higher than 1%. The aim of this paper is to show that, by providing an improvement to the model, ultrasound can be used to probe the bubble characteristics in a concentrated bubbly viscoelastic medium: wheat flour dough.

#### 2. Model

The model used in this article to describe the propagation of ultrasonic waves in a bubbly viscoelastic medium is a synthesis of ideas from three previous publications. The pioneering formula of Foldy (1945) is modified by Prosperetti (1977) to attain a better description of thermodynamic changes of the gas in the bubbles, and viscoelastic effects are included according to the work of Alekseev and Rybak (1999).

## 2.1. Governing equations

Let us consider a monochromatic pressure plane-wave, with angular frequency  $\omega$ , travelling through a bubbly medium, along the  $z$  direction. The pressure field is then of the type  $\exp[i(kz - \omega t)]$  with an effective wave vector  $k$  given by:

$$k^2 = (\omega/v_0)^2 + b, \quad (1)$$

where  $v_0$  is the velocity of waves in the matrix, and  $b$  is a term accounting for the effect of bubbles:

$$b = 4\pi \int N(r) dr f(r, \omega), \quad (2)$$

with  $N(r)dr$  the number of bubbles whose radius is between  $r$  and  $r + dr$  per unit volume, and  $f(r, \omega)$  is the scattering function of a bubble with radius  $r$  at frequency  $\omega/2\pi$ .

In line with experimental results for the bubble size distribution in dough (Bellido et al., 2006; Campbell et al., 1991), we consider a log-normal distribution of bubble radii:

$$N(r) = \frac{N_{tot}}{\sqrt{2\pi}\varepsilon r} \exp\left[-\frac{(\ln(r/r_0))^2}{2\varepsilon^2}\right], \quad (3)$$

with a total number of bubbles per unit volume,  $N_{tot}$ , a median radius,  $r_0$ , and a logarithmic standard deviation  $\varepsilon$ . It is usually more convenient to use the total volume fraction of bubbles  $\Phi$  rather than  $N_{tot}$ :

$$N_{tot} = \frac{3\Phi}{4\pi \times r_0^3 \times \exp(9\varepsilon^2/2)}. \quad (4)$$

When a bubble is excited by a pressure wave whose wavelength is much larger than its radius ( $\omega r/v_0 \ll 1$ ), it undergoes radial oscillations and behaves like a harmonic oscillator, with a scattering function given by

$$f(r, \omega) = \frac{r\omega^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}, \quad (5)$$

where  $\omega_0$  and  $\Gamma$  are the resonance angular frequency and the damping rate of the harmonic oscillator, respectively. A good approximation for  $\omega_0$  is (Alekseev and Rybak, 1999):

$$\omega_0 \approx \frac{1}{r} \sqrt{\frac{3\gamma P_0 + 4\mu'}{\rho}}, \quad (6)$$

where  $\gamma$  is the ratio of the specific heat capacities of the gas in the bubble,  $P_0$  is the static pressure of the gas,  $\rho$  the mass density of the matrix, and  $\mu'$  the real part of its shear modulus. When the matrix is not elastic ( $\mu' = 0$ ),  $\omega_0$  is known as the Minnaert angular frequency and its order of magnitude is 30 kHz for a 100  $\mu\text{m}$  bubble in water at atmospheric pressure (Minnaert, 1933). The damping rate of the bubble involves three different loss mechanisms ( $\Gamma = \Gamma_{rad} + \Gamma_{vis} + \Gamma_{th}$ ): the bubble loses energy by radiating ultrasonic waves ( $\Gamma_{rad} = \omega^2 r/v_0$ ); viscous losses occur at the interface of the bubble ( $\Gamma_{vis} = 4\mu''/\rho\omega r^2$ , where  $\mu''$  is the imaginary part of the shear modulus); and finally, thermal dissipation contributes to the damping ( $\Gamma_{th}$ ).

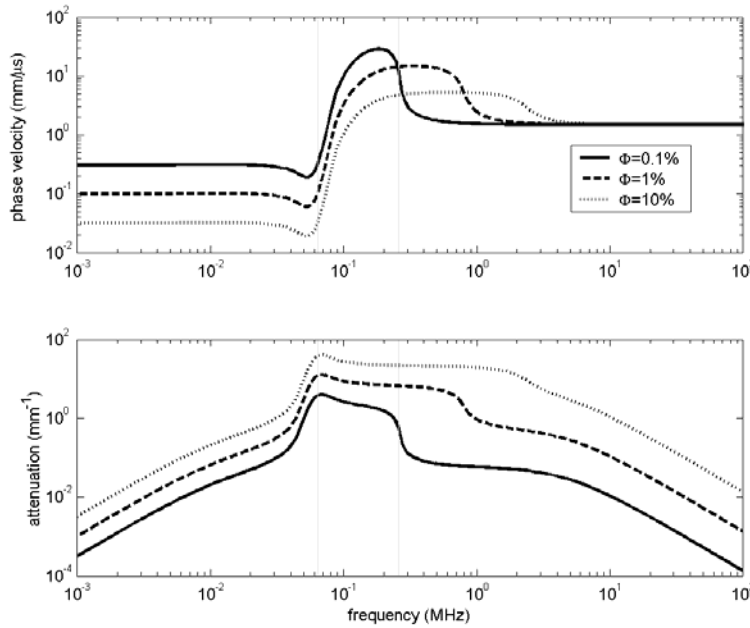
In the aim of not obscuring the main physical mechanisms involved in the theory, the complete set of exact equations we used for our calculations is not given here. More precisely, equation (6) should include a fuller description of the thermodynamics of the gas, along with effects due to surface tension. Those corrections, and the complete expression for  $\Gamma_{th}$ , can be found in Leighton (1994), pages 172 to 188.



It should be noted that the model presented here has been experimentally checked only for dilute bubbly liquids (Commander and Prosperetti, 1989; Wilson et al., 2005), but its validity for  $\Phi$  larger than 1% is still questionable (Commander and Prosperetti, 1989; Kargl, 2002). Furthermore, to the authors' knowledge, no experimental results demonstrating the effects of bubbles in viscoelastic media on ultrasonic velocity and attenuation have been presented in the literature.

## 2.2. Description of the different regimes

Equations (1) to (6) give a good general picture of the propagation of ultrasonic waves in a bubbly medium. In particular, they show why bubbles have such a dramatic influence on the propagation of ultrasound. Bubbles exhibit a resonance at low frequency, i.e., at a frequency for which the wavelength is much larger than the radius of the bubbles. As a consequence, the scattering function  $f$  can make the term  $b$  in equation (1) large even though  $(\omega/\nu_0)^2$  remains small. It follows that the propagation of ultrasound in a bubbly medium can usually be divided into three different frequency regimes (Figure 1), where the phase velocity ( $v = \omega/\Re(k)$ ) and the attenuation ( $\alpha = 2\Im m(k)$ ) are plotted as a function of frequency for an inelastic medium.



**Figure 1:** Behaviour of the phase velocity (top) and attenuation (bottom) as a function of frequency illustrating the three different frequency regimes and the influence of  $\Phi$ . The bubble distribution is almost monodisperse ( $\varepsilon = 0.1$ ) with a mean radius of  $50 \mu\text{m}$ . Vertical bars correspond to  $f_0$  and  $f_1$  at the lower and higher frequencies, respectively, for the  $\Phi = 0.1\%$  case.

At low frequencies, i.e., below the typical Minnaert frequency  $f_0 = \omega_0/2\pi$  of the bubbles (see equation 6), the bubbly medium behaves like an effective medium in which ultrasound propagates with a low velocity,  $v_{\text{eff}}$ , that is determined by:

$$v_{\text{eff}} = \sqrt{\frac{3P_0 + 4\mu'}{3\rho\Phi}}. \quad (7)$$

When the elasticity is null, equation 7 is equivalent to Wood's approximation. Note that  $v_{eff}$  does not depend on the way the gas is divided up into bubbles within the medium, but solely on the total volume fraction of bubbles,  $\Phi$ .

Near and above  $f_0$ , the attenuation and phase velocity of ultrasound in the medium undergo changes as a function of frequency that will be referred to as "peaks" in this article. The reason for these peaks is that bubbles respond in phase opposition to the incoming wave, yielding a large negative  $b$  term in equation 1, and consequently a negative  $k^2$ . The upper frequency limit of the peak is given by

$$f_1 \approx \frac{v_0 \sqrt{3\Phi}}{2\pi r_0 \exp(2\varepsilon^2)} \quad (8)$$

As a rule of thumb,  $f_1$  corresponds to the frequency for which the wavelength is of the same order of magnitude as the typical distance between bubbles.

At high frequencies, the phase velocity of ultrasound in the bubbly medium becomes close to the velocity of sound in the matrix  $v_0$ , and the attenuation attains much lower values than in the previous regime.

### 2.3. Relevant parameters

The position and shape of phase velocity and attenuation peaks are strongly related to the size distribution of bubbles incorporated in the medium. One can thus consider using ultrasonic measurements to accurately determine  $r_0$  and  $\varepsilon$  in an aerated sample. To do this, it is of course necessary to know the other parameters that affect the position and shape of the peaks. Among the complete list of the most relevant parameters ( $\Phi, r_0, \varepsilon, \mu', \mu'', v_0, \rho, P_0$ ), three are usually well known ( $\Phi, \rho, P_0$ ), two are more difficult to determine but have a second-order effect ( $\mu'', v_0$ ), and three have a huge influence and are difficult to determine ( $r_0, \varepsilon, \mu'$ ). We shall discuss in detail the influence of some of these parameters.

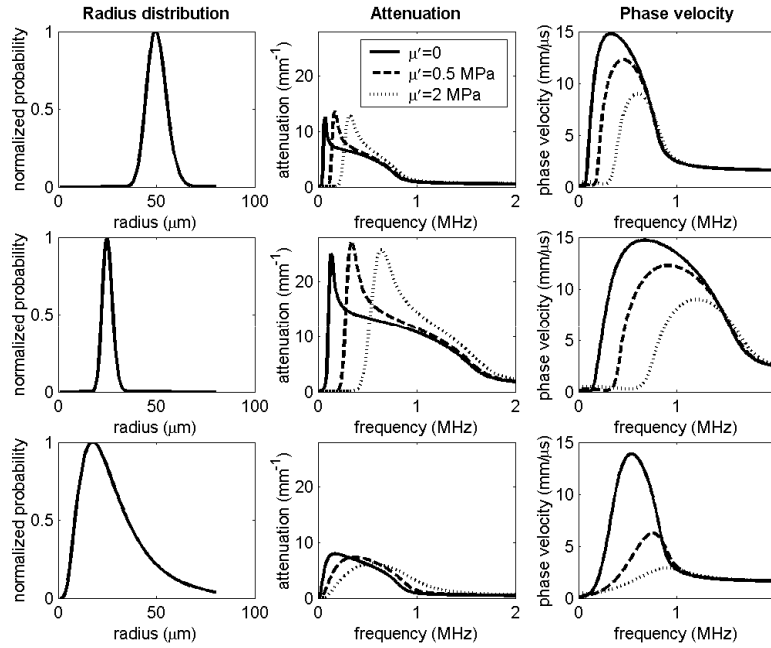
Figure 1 emphasises the dramatic effect of the total volume fraction of bubbles on the acoustic parameters. At low frequency, increasing  $\Phi$  decreases the phase velocity (in accordance with equation 7). Experimental verification of this result in dough mixed at different headspace pressures has been reported by Elmehdi et al. (2004). The peaks are also affected by  $\Phi$ : they are broader with an increase in  $\Phi$  because  $f_1$  increases and  $f_0$  does not change (see equations 6 and 8), and the attenuation is larger and the phase velocity is lower with an increase in  $\Phi$ . The higher attenuation is attributable to the larger number of scatterers.

Figure 2 illustrates the influence of bubble polydispersity and the shear modulus of the matrix on the phase velocity and attenuation of the bubbly medium. Each line of the figure represents a distribution of bubble radii and the effect that this has on the phase velocity and attenuation for a matrix with three different values of the real part of its shear modulus.

From the first row to the second, the influence of  $r_0$  is displayed. A decreasing median radius shifts  $f_0$  to higher frequency (because it affects the Minnaert frequency, see equation 6). A smaller median radius also increases  $f_1$  as well as the maximum in the attenuation (because for a given volume fraction, smaller bubbles mean more bubbles).

On going from row 2 to row 3 of Figure 2, the median size is maintained but the polydispersity of the distribution is significantly increased. As a result,  $f_0$  is not changed

much, but both  $f_1$  and the maximum of attenuation are lowered (because –still for a given  $\Phi$ – a more polydisperse distribution means fewer bubbles).



**Figure 2:** Influence of bubble polydispersity (volume fraction of 1%) and shear modulus of the matrix on the attenuation and phase velocity of ultrasound in a bubbly medium. First line,  $r_0 = 50 \mu\text{m}$  and  $\varepsilon = 0$ . ; second line,  $r_0 = 25 \mu\text{m}$  and  $\varepsilon = 0.1$ ; third line,  $r_0 = 25 \mu\text{m}$  and  $\varepsilon = 0.6$ .

The influence of elasticity of the matrix is also shown in Figure 2. An increasing real part of the shear modulus makes  $f_0$  larger (in accordance with equation 7). It should be noted that  $\mu'$  has a significant influence only when its value is comparable with  $P_0$ .

A point of particular interest in Figure 2 is that the high frequency parts of the peaks in both velocity and attenuation are not much affected by variation in values of the shear modulus. It means that even if  $\mu'$  is unknown,  $r_0$  and  $\varepsilon$  can be estimated from ultrasonic measurements in the high frequency region. However, a multiplicity of solutions involving  $r_0$  and  $\varepsilon$  are possible (Equation 8), and as illustrated in Figure 2, the high frequency behaviour of row 1 is the same as that of row 3 because the term  $r_0 \exp(2\varepsilon^2)$  of Equation 8 is identical in both cases.

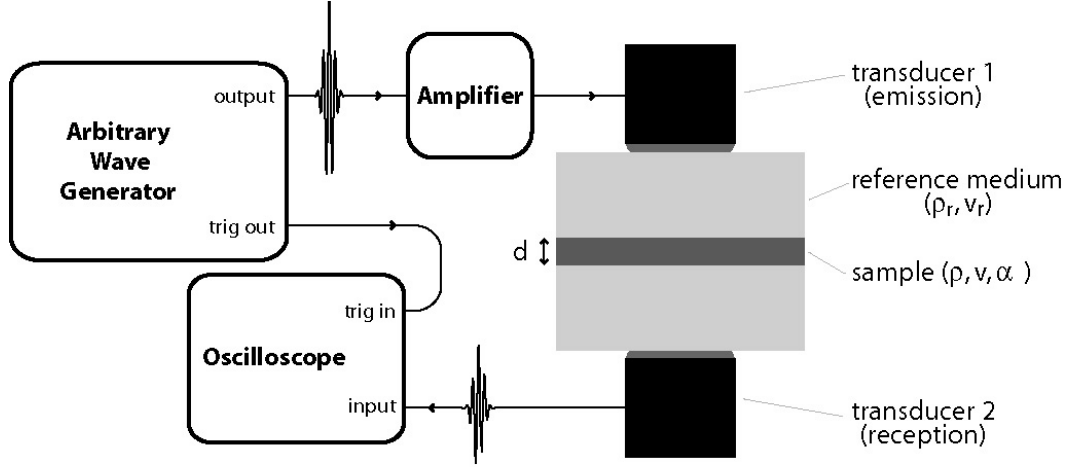
### 3. Material and method

#### 3.1. Experimental setup and sample preparation

The ultrasonic velocity and attenuation were measured with a pulsed transmission technique, using the equipment shown in Figure 3. A short Gaussian pulse, emitted by transducer 1, propagates through a three-layer system made of the sample sandwiched between two reference materials, and is recorded by transducer 2. Different pairs of transducers were used in order to cover a wide range of frequency (from 50 kHz to 5 MHz).

Three different bubbly viscoelastic media were investigated. First, two types of transparent gels with known distributions of bubbles were used in order to validate the model. The first material was a commercial hair gel, with a negligible shear modulus, in which a fairly monodisperse distribution of air bubbles was injected with a  $20 \mu\text{m}$  (i.d.) capillary connected to a syringe. The second transparent material was an agar gel (2% w/v) aerated by

bubbles entrained when the liquid sol is injected at high speed with a syringe, and the bubbles are then entrapped as the sol gels. For both transparent materials, the bubble size distributions were measured by image analysis. Ultrasonic measurements for these samples were performed in a tank of water ( $\rho_r = 1 \text{ g/cm}^3$ ,  $v_r = 1.5 \text{ mm/}\mu\text{s}$ ).



**Figure 3:** Sketch of the experimental device. An ultrasonic pulse is transmitted through a reference material (density  $\rho_r$ , velocity  $v_r$ ) and sample (density  $\rho$ , velocity  $v$ , attenuation  $\alpha$ , thickness  $d$ ).

The third material was unyeasted wheat flour dough (100g of CWRS flour, 61mL of distilled water and 2.4g of salt, mixed for 5.5 minutes). Since water can modify the properties of the dough, measurements were performed by sandwiching the sample between two acrylic plates ( $\rho_r = 1.19 \text{ g/cm}^3$ ,  $v_r = 2.74 \text{ mm/}\mu\text{s}$ ). Ultrasonic measurements were taken over a period of time for each transducer.

### 3.2. Signal processing

The procedure used to measure  $v$  and  $\alpha$  relied on a comparison between the pulse  $s_{ref}(t)$ , transmitted through reference material only, and the pulse  $s_{sam}(t)$ , transmitted through the reference materials plus sample. Let us denote  $R$  as the ratio of their Fourier transforms:

$$R = \frac{FT(s_{sam})}{FT(s_{ref})} = T \exp\left(-\frac{\alpha d}{2}\right) \exp\left(i \frac{\omega d}{v}\right), \quad (9)$$

where the transmission coefficient  $T$  is given by:

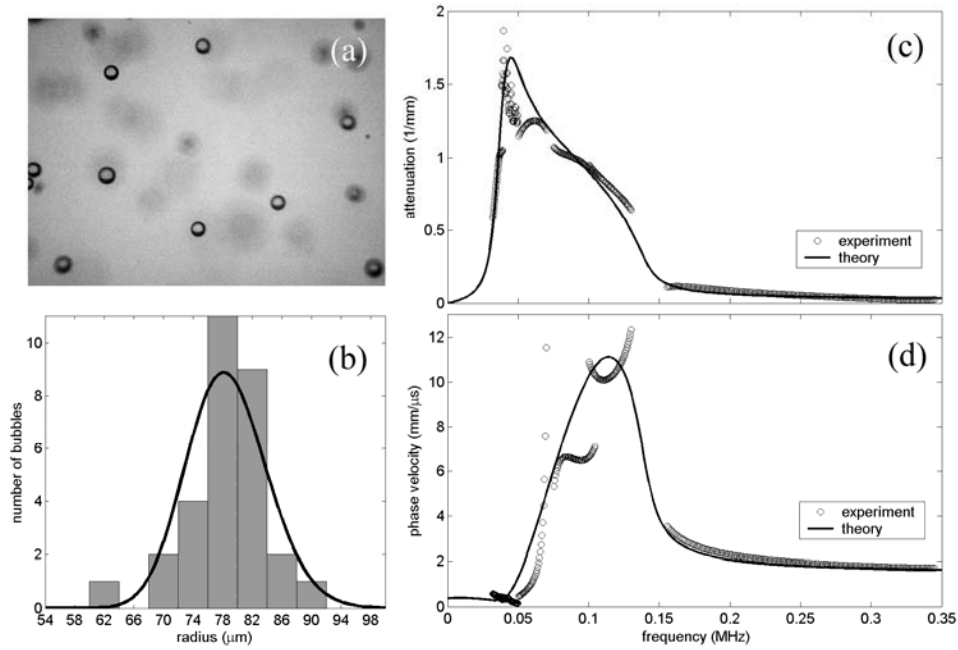
$$T = \frac{4Z_r Z}{(Z_r + Z)^2}, \quad (10)$$

provided that multiple reflections in the sample can be neglected. Here,  $Z_r = \rho_r v_r$  is the impedance of the reference material, and  $Z = \rho v / (1 + i\alpha v / 2\omega)$  is the complex impedance of the sample. Note that  $Z$  has to be considered as complex because the attenuation in a bubbly medium can become very high. There is no analytical solution to extract  $\alpha$  and  $v$  directly from equation 9, but one can use an iterative solution, starting with an initial iteration value of  $T = 1$ .

## 4. Results and discussion

### 4.1. Hair gel

For the hair gel sample, almost all of the eight relevant parameters defined in Part 2 were known. Parameters  $P_0$ ,  $\rho$  and  $\nu_0$  do not differ much from the value they would have in water. The real part of the shear modulus was estimated by measuring the Minnaert frequency of bubbles in the hair gel, and was found to be negligible ( $\mu' \approx 0$  Pa). The distribution of bubbles was determined by analysing images such as the one in Figure 4a. Figure 4b shows the histogram of measured radii and the corresponding bubble distribution ( $r_0 = 79 \mu\text{m}$ ,  $\varepsilon = 0.06$ ). The total volume fraction of bubbles was also estimated from image analysis as  $\Phi = 0.068\%$ . The only parameter that remained adjustable was the imaginary part of the shear modulus  $\mu''$ , which is determined by the (dynamic) viscosity of the gel. Figures 4(c) and 4(d) compare the experimental measurements with the prediction of the model for the attenuation and the phase velocity. The agreement is good when  $\mu''$  is set to a value corresponding to 80 times the viscosity of water.



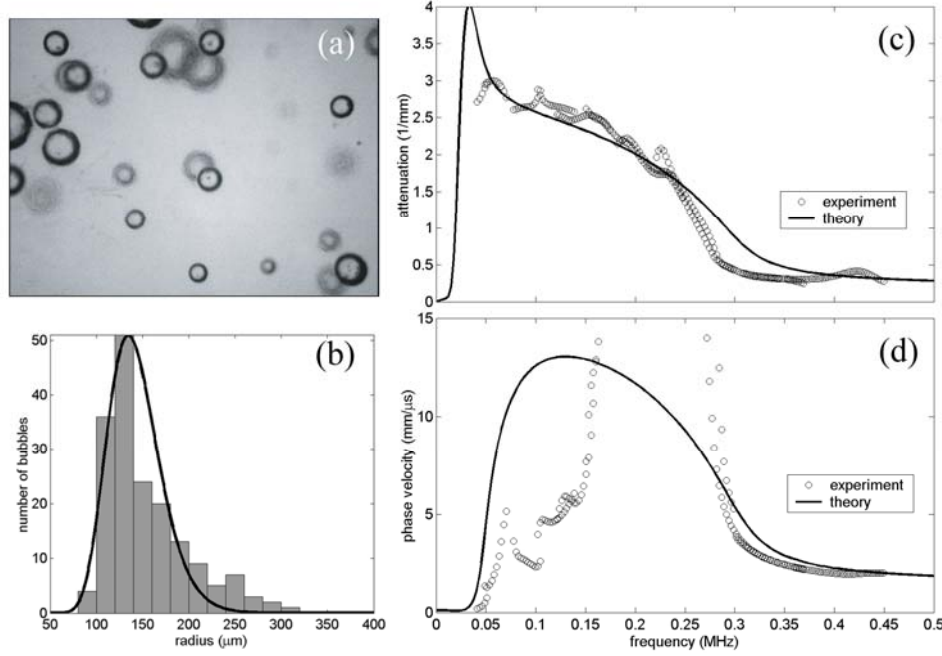
**Figure 4:** Bubbles in hair gel. (a) Sample image. (b) Size distribution measured from images. (c) and (d) Comparison between experiment and theory for attenuation and phase velocity as a function of frequency.

### 4.2. Agar gel

The same approach was taken to analyse the properties of the agar gel sample. Optical imaging of the distribution of bubbles showed it to be characterized by:  $r_0 = 140 \mu\text{m}$ ,  $\varepsilon = 0.2$  and  $\Phi = 1.3\%$ . In the literature, a typical shear modulus for a 2% agar gel is  $\mu' \approx 50$  kPa and  $\mu'' \approx 2.5$  kPa for frequencies of 100 Hz and lower (Hamhaber et al., 2003). Furthermore, our measurement with a  $400 \mu\text{m}$  single bubble trapped in the agar gel yielded a Minnaert frequency  $f_0$  of 10 kHz, a result that is consistent with a value of  $\mu' \approx 50$  kPa (Equation 6). We consequently considered that the shear modulus was frequency independent for agar gel, and took values found in the literature.

A comparison between the experimental data and the model is shown in Figures 5c and 5d. The agreement is good for attenuation. For the phase velocity, the beginning of the peak at low frequency and the end at high frequency, as predicted by the model, are found to agree well with experimental velocities. However the agreement significantly deteriorates at

the peak maximum. This deviation can be explained by a limitation of the experimental method, since high velocities cannot be precisely measured because they necessitate measurement of very small phase shifts. This explains the behavior of experimental points in figures 4d and 5d for values of phase velocity greater than 5 mm/ $\mu$ s (corresponding to frequencies between 0.07 and 0.13 MHz in figure 4d, and between 0.07 and 0.3 MHz in figure 5d).



**Figure 5:** Bubbles in agar gel. (a) Sample image. (b) Size distribution measured from images. (c) and (d) Comparison between experiment and theory for attenuation and phase velocity as a function of frequency.

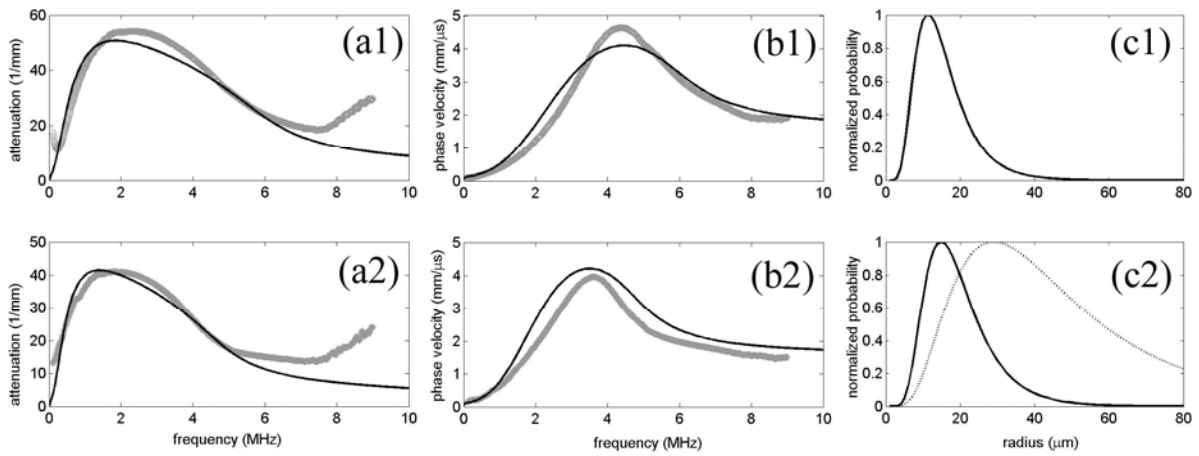
### 4.3. Dough

For dough, opacity means that images of the bubbles were not available and the parameters of the distribution ( $r_0$  and  $\varepsilon$ ) had to be inferred from acoustic measurements. The volume fraction of air was obtained from density measurements (Elmehdi et al., 2004):  $\Phi = 12\%(\pm 1\%)$ . Density measurements made as a function of headspace pressure in the mixer also allowed the value of the density of the bubble free dough to be determined:  $\rho = 1.29 \text{ g/cm}^3$ . The velocity of sound in bubble-free dough was determined from high frequency measurements (20 MHz):  $v_0 = 1.6 \text{ mm}/\mu\text{s}$ . The shear modulus of dough was more difficult to estimate, especially for the high frequencies used in the experiments (Létang et al. 2001). From measurement of the phase velocity at low frequency (40 kHz), the real part of the shear modulus could be obtained (see equation 7):  $\mu' = 860 \text{ kPa}$  at 40 kHz. According to low frequency rheological measurements (0.01-100 Hz), the shear modulus of dough scales with frequency as  $f^{1/3}$ , and  $\mu''/\mu'$  roughly equals 0.7 (Keentok et al., 2002). With an audacious extrapolation to high frequencies, the following expressions were used to estimate the real and imaginary parts of the shear modulus in the dough samples:

$$\mu' = 860 \text{ kPa} \times (f / 40 \text{ kHz})^{1/3} \quad (11a)$$

$$\text{and} \quad \mu'' = 600 \text{ kPa} \times (f / 40 \text{ kHz})^{1/3} \quad (11b)$$

Figure 6 displays the attenuation and phase velocity measured in dough samples at two different times after mixing. Theoretical curves are also shown, for values of  $r_0$  and  $\varepsilon$  that give a satisfactory fit using equations 1 to 6, and the corresponding distributions derived from the ultrasound data are plotted in the third column. The fitting procedure was guided by the remarks in Section 2.3 concerning the sensitivity to the unknown parameters. The first step consisted in assuming null elasticity and adjusting  $r_0$  and  $\varepsilon$  to obtain a good agreement for the high frequency part of the peaks. Then  $\mu'$  and  $\mu''$  were set according to equations 11 and the distribution slightly modified to fit the low frequency part of the peaks. As a result, the following parameters were found:  $r_0 = 14 \mu\text{m}$ ,  $\varepsilon = 0.46$  for 53 minutes after mixing;  $r_0 = 18 \mu\text{m}$ ,  $\varepsilon = 0.44$  for 96 minutes after mixing. It is noteworthy that these results show the effects of disproportionation occurring in the dough, namely an increasing size of the bubbles with time (van Vliet, 1999).



**Figure 6:** Measurements in dough. Attenuation (a), phase velocity (b) and inferred size distribution of bubbles(c) obtained from a sample of dough analysed 53 minutes after mixing (1) and 96 minutes after mixing (2). The dotted curve in (2c) corresponds to the size distribution measured by x-ray tomography for a sample of dough rested for 90 minutes after mixing (Bellido et al., 2006)

An independent measurement of the size distribution of bubbles in dough was attempted with x-ray tomography. The result is displayed in figure 6(c2) (dotted curve) for a sample rested for 90 minutes after mixing. There is a significant discrepancy between this result and the distribution inferred from ultrasonic measurements. However, comparison between results is not straightforward because the conditions of sample preparation were not the same in both cases: ultrasound samples were compressed to obtain 0.3 mm slices (because attenuation is high, thickness has to be small enough for the transmitted pulse to be measurable), whereas samples analysed by tomography were not compressed to the same extent. Compression effects might therefore explain why the distribution of smaller bubbles obtained with the ultrasonic technique is different to that obtained tomographically. To clarify this point, future work is underway investigating the influence of compression on bubble sizes during the ultrasonic experiments.

## 5. Conclusion

We have presented a model for the propagation of ultrasonic waves in a bubbly viscoelastic medium and shown how the effect of the shear modulus on the acoustic signatures could be discriminated from the effect of the bubble size distribution. The validity of the model has been experimentally checked for two well-characterized bubbly gels. Experiments with dough were also performed, and, as expected, peaks in the velocity and



attenuation as a function of frequency were observed, and peak position evolved with time after mixing, consistent with changes in the bubble size distribution arising from disproportionation. An attempt to infer the size distribution of bubbles from the ultrasonic results was made using the modified Foldy model. The model successfully predicted the increase in median bubble size and the narrowing of the distribution, but a comparison with the bubble distribution obtained from x-ray tomography indicated that median size and the degree of dispersion in bubble sizes were underpredicted. The discrepancy might be related to different experimental conditions for sample preparation, or to a deficiency of this model in coping with a high concentration of bubbles. Nevertheless, refinement of the Foldy model has the potential to predict bubble sizes from the strong signature on the frequency dependent response of velocity and attenuation that are manifest in dough.

### Acknowledgement

We are grateful for research funding from NSERC's Strategic Grants programme.

### References

- Alekseev V. N., Rybak S. A. (1999). Gas bubble oscillations in elastic media. *Acoustical Physics*, 45:535-540.
- Babin P.; Della Valle, G.; Dendievel, R.; Lassoued, N.; Salvo. L. (2005) Mechanical properties of bread crumbs from tomography based finite element simulations. *J Materials Sci.*, 40: 5867-5873.
- Bellido G.G., Scanlon M.G., Page J.H., Hallgrimsson B. (2006). The bubble size distribution in wheat flour dough. *J. Agric. Food Chem.* (submitted).
- Campbell G. M., Rielly C. D., Fryer P. J., Sadd P. A. (1991). The measurement of bubble size distributions in an opaque food fluid. *Trans. Inst. Chem. Eng. Part C: Food Bioprod. Proc.*, 69:67:76.
- Campbell G. M., Rielly C. D., Fryer P. J., Sadd P. A. (1998). Aeration of bread dough during mixing: effect of mixing dough at reduced pressure. *Cereal Foods World*, 43:163-167.
- Chin N.L., Martin P.J., Campbell G.M. (2005). Dough aeration and rheology: Part 3. Effect of the presence of gas bubbles in bread dough on measured bulk rheology and work input rate. *J. Sci. Food Agric.*, 85: 2203-2212.
- Commander K. W., Prosperetti A. (1989). Linear pressure waves in bubbly liquids: comparison between theory and experiments. *J. Acoust. Soc. Am.*, 85:732-746.
- Duraiswami R., Prabhukumar S., Chahine G. L. (1998). Bubble counting using an inverse acoustic scattering method. *J. Acoust. Soc. Am.*, 104: 2699-2717.
- Elmehdi H. M., Page J. H., Scanlon M. G. (2004). Ultrasonic investigation of the effect of mixing under reduced pressure on the mechanical properties of bread dough. *Cereal Chem.*, 81: 504:510.
- Elmehdi, H. M., Page, J. H. and Scanlon, M. G. (2005). Investigating the porosity of dough using ultrasound, pp. 188-192 in: *Using Cereal Science and Technology for the benefit of Consumers: Proceedings of 12th ICC Cereal & Bread Congress*, S.P. Cauvain, S.S. Salmon, and L.S. Young (eds.), Woodhead Publishing Limited, Cambridge.
- Foldy L. L. (1945). The multiple scattering of waves. *Physical Review*, 67: 107-119.

- Hamhaber U., Grieshaber F. A., Nagel J. H., Klose U. (2003). Comparison of quantitative shear wave MR-Elastography with mechanical compression tests. *Magnetic Resonance in Medicine*, 49:71-77.
- Kargl S. G. (2002). Effective medium approach to linear acoustics in bubbly liquids. *J. Acoust. Soc. Am.*, 111:168-173.
- Keentok M., Newberry M. P., Gras P., Bekes F., Tanner R. I. (2002). The rheology of bread dough made from four commercial flours. *Rheol. Acta*, 41:173-179.
- Leighton T. G. (1994). *The Acoustical Bubble*. Academic Press, London.
- Létang C, Piau M, Verdier C, Lefebvre L (2001). Characterization of wheat-flour-water doughs: a new method using ultrasound. *Ultrasonics*, 39: 133-141.
- Prosperetti A. (1977). Thermal effects and damping mechanisms in the forced radial oscillations of gas bubbles in liquids. *J. Acoust. Soc. Am.*, 61:17-27.
- Van Vliet, T. (1999). Physical factors determining gas cell stability in a dough during bread making, pp 121-127 in *Bubbles in Food*; Campbell, G.M., Webb, C., Pandiella, S.S., and Niranjana, K. Eds.; Eagan Press: St. Paul, MN..
- Wilson P. S., Roy R. A., Carey W. M. (2005). Phase speed and attenuation in bubbly liquids inferred from impedance measurements near the individual bubble resonance frequency. *J. Acoust. Soc. Am.*, 117: 1895-1910.

## 2.3 Bulles dans un élastomère [Article 3]

La pâte à pain est un milieu opaque, dont les propriétés rhéologiques et le contenu en bulles varient avec le temps. Pour travailler dans des conditions mieux contrôlées, nous avons opté pour un milieu plus simple, avec un module de cisaillement assez élevé pour vérifier l'importance de ce paramètre. Notre choix s'est porté sur un élastomère, un polydiméthylsiloxane (PDMS) transparent de module de cisaillement de l'ordre de 0.6 MPa. Pour limiter la remontée des bulles, l'échantillon était mis en rotation lente pendant la solidification (voir figure 2.9).

Les résultats des mesures ultrasonores sur des échantillons de PDMS bulleux ont fait l'objet d'un [article](#) dans *Physical Review E* en 2011 [35], reproduit ci-dessous.<sup>7</sup>

On constate (voir figure 5) qu'on trouve le même désaccord que dans le cas de la pâte à pain : les pics sont à plus hautes fréquences que prévu par le modèle de Foldy. Ajuster les données avec le modèle est possible, mais donne une distribution en taille de bulles incompatible avec la réalité (sans qu'il soit possible ici d'invoquer un écrasement de l'échantillon). Ce résultat, confirmé avec d'autres échantillons non présentés dans l'article, permet déjà d'éliminer l'hypothèse d'un rôle des granules d'amidon dans la pâte à pain, puisqu'il n'y a pas de particules solides dans le PDMS. Par ailleurs, nous connaissons le module de cisaillement du PDMS, y compris à haute fréquence. L'hypothèse d'une micro-rhéologie différente de la rhéologie globale est mise à mal par la figure 6 qui montre que pour ajuster les courbes aux données, en prenant la vraie distribution en taille des bulles, il faut invoquer des valeurs de  $\mu$  totalement irréalistes. L'effet de la stratification de l'échantillon a également pu être analysé puisque des tomographies aux rayons X de plusieurs parties de l'échantillon ont été réalisées, donnant accès à la répartition en 3D des bulles. On constate (voir figure 7) que l'échantillon n'est pas homogène dans son épaisseur : il y a plus de bulles sur une face, et une absence de bulle sur les 500 premiers microns de l'échantillon, probablement la signature d'un début de crémage lors du remplissage de la cellule de PDMS, qui se faisait à l'horizontale, avant le montage sur le moteur. Tenir compte de cette stratification de l'échantillon ne change rien au désaccord, comme le montre la figure 8.

Les mesures de tomographie par rayons X permettaient aussi d'avoir une idée de la corrélation de positions des bulles, en estimant la fonction de corrélation de paire  $g(r)$ , c'est-à-dire la probabilité de trouver une bulle à une distance  $r$  d'une autre bulle. En traitant indifféremment toutes les bulles, quel que soit leur rayon, on trouvait une fonction  $g$  proche de ce qu'on attend pour une assemblée, polydisperse, de sphères rigides (voir figure 9). On peut

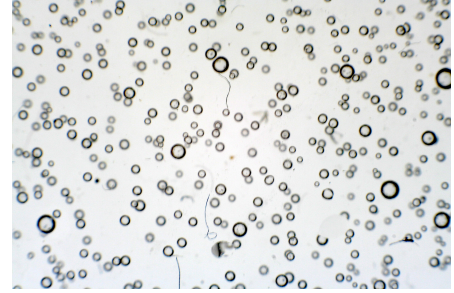


FIGURE 2.8 – Photo d'un échantillon d'élastomère bulleux. Le rayon moyen des bulles est de 150  $\mu\text{m}$ .

7. La même erreur de signe que dans l'article 1 est à signaler : devant le  $\delta$  de l'équation (4), il faut lire  $-i$ . Il y a également une erreur dans l'équation (A5) : le terme  $f_s(R)$  ne doit a priori pas sortir de l'intégrale. Mais cela ne change pas les résultats de la discussion qui suit.

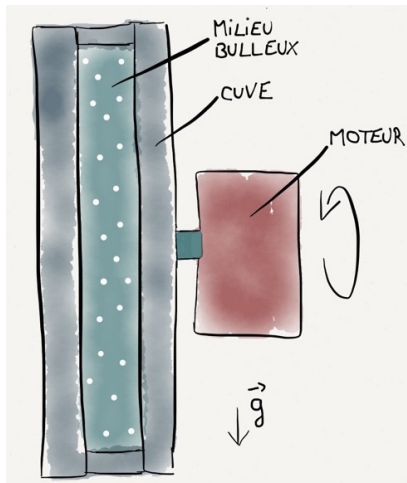


FIGURE 2.9 – Schéma du montage utilisé pour éviter la remontée des bulles (crémage) pendant la solidification de l'élastomère. En tournant lentement la cuve qui contient le milieu bulleux, on limite les effets de la gravité. Mais cette rotation a sans doute un effet sur la structure du milieu. En effet, lors des premiers essais de fabrication, la vitesse de rotation était trop lente et donnait des milieux bulleux trop hétérogènes. Les corrélations de positions révélées par la tomographie par rayons X s'expliquent sans doute par une vitesse de rotation encore trop faible, bien que suffisante pour que la structure ait l'air homogène à l'œil.

incorporer cette information sur la corrélation au modèle, en utilisant le modèle de Keller [32], et la [figure 10](#) montre que l'effet va dans le bon sens (les pics sont décalés vers les plus hautes fréquences) mais est très nettement insuffisant.

On peut tenir compte de la polydispersité dans la corrélation en définissant une fonction  $g(R, r)$  qui s'intéresse aux bulles à une distance  $r$  d'une bulle centrale de rayon  $R$ . En étudiant 3 catégories de taille de bulles, on trouve (voir la [figure 11](#)) que les petites bulles ont tendance à former des amas, tandis que les plus grosses sont isolées. Tenir compte de cet effet sur la propagation, à l'aide d'une généralisation de Keller proposée en [annexe](#) de l'article 3, amplifie le décalage constaté précédemment. On peut même obtenir un accord raisonnable (voir la [figure 12](#)), en poussant la fonction de corrélation jusqu'à l'extrême de ses barres d'erreur.

Les corrélations de positions sont donc peut-être une des clefs du “mystère de la pâte à pain”. Mais la réponse n'est pas encore complète. En particulier, dans le cas du PDMS, pour obtenir l'accord de la [figure 12](#) on doit invoquer une incertitude assez grande sur la fonction de corrélation de paire, due à une statistique insuffisante. Mais, pour cet échantillon, quasiment tout le volume avait été tomographié et analysé. Cela signifie que l'onde acoustique qui a traversé le milieu n'avait pas plus de “statistique” que nous...

En conclusion de l'article figure une discussion sur l'effet possible des corrélations pour expliquer d'autres résultats expérimentaux de la littérature. Les données de Silberman, par exemple, avaient été très bien ajustées par un modèle proposé par Feuillade [19]. Mais ce modèle comportait une distance maximale d'interaction entre les bulles, mal définie, qui jouait le rôle de paramètre d'ajustement supplémentaire. Il est intéressant de constater que notre équation (A4) pour tenir compte de la corrélation est très proche de la formule proposée par Feuillade. Le désaccord entre les mesures de Silberman et le modèle de Foldy pourrait donc venir d'une corrélation de positions non triviale dans le milieu bulleux, ce qui a déjà été observée dans les écoulements de bulles [36].

# Influence of positional correlations on the propagation of waves in a complex medium with polydisperse resonant scatterers

Valentin Leroy\*

*Laboratoire MSC, Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), Paris, France*

Anatoliy Strybulevych and John H. Page

*Department of Physics & Astronomy, University of Manitoba, Winnipeg, Canada*

Martin G. Scanlon

*Department of Food Science, University of Manitoba, Winnipeg, Canada*

(Dated: April 26, 2011)

We present experimental results on a model system for studying wave propagation in a complex medium exhibiting low frequency resonances. These experiments enable us to investigate a fundamental question that is relevant for many materials, such as metamaterials, where low-frequency scattering resonances strongly influence the effective medium properties. This question concerns the effect of correlations in the positions of the scatterers on the coupling between their resonances, and hence on wave transport through the medium. To examine this question experimentally, we measure the effective medium wave number of acoustic waves in a sample made of bubbles embedded in an elastic matrix over a frequency range that includes the resonance frequency of the bubbles. The effective medium is highly dispersive, showing peaks in the attenuation and the phase velocity as functions of the frequency, which cannot be accurately described using the Independent Scattering Approximation (ISA). This discrepancy may be explained by the effects of the positional correlations of the scatterers, which we show to be dependent on the size of the scatterers. We propose a self-consistent approach for taking this “polydisperse correlation” into account and show that our model better describes the experimental results than the ISA.

PACS numbers: 43.35.+d, 43.20.+g

## I. INTRODUCTION

Propagation of waves in complex media continues to be a very active subject of research. Of particular interest are complex media containing scatterers with resonances at low frequencies. Indeed, when the wavelength is large compared to the typical size of the inhomogeneities, one can use an effective medium approach, *i.e.*, consider that the wave propagates as it would do in a homogeneous medium with an effective wavevector whose value is related to the composition and the structure of the material. In most cases, the effective medium has properties that are close to the average of that of its components. But when there are resonant scatterers, their contribution to the wave field can be strong enough to significantly alter the propagation. In some cases, the effective media show intriguing properties, such as a negative refractive index, which are not encountered in nature; such materials are called *metamaterials* [1–4].

One of the key issues for wave propagation in strongly scattering materials is the effect of coupling between the scatterers near resonance, an effect that makes the traditional independent scattering approximation (ISA) inadequate. Indeed, when the resonances are strong and/or the concentration of scatterers high, positional corre-

lations and multiple scattering loops may have a non-negligible contribution. To gain a better understanding of the underlying physics, experiments on a well-controlled system with strong resonances are needed. One such system can be found in acoustics, where bubbly liquids are often regarded as model systems for the study of wave propagation with low frequency resonances. Indeed, air bubbles in a liquid have a particularly low resonance, known as the Minnaert resonance, with an angular frequency given by

$$\omega_M = \frac{v_1 \sqrt{3\rho_1/\rho_0}}{R},$$

where  $R$  is the bubble radius,  $v_1$  is the velocity of longitudinal waves in air, and  $\rho_1$  and  $\rho_0$  are the mass densities of the air and the liquid, respectively. As the ratios of the densities and the velocities are small, it is easy to see that this resonance is at very low frequency:

$$\frac{\omega_M R}{v_0} = \sqrt{3\rho_1/\rho_0} \frac{v_1}{v_0} \ll 1.$$

Here,  $v_0$  is the longitudinal sound velocity in the liquid. This equation shows that, at resonance, the wavelength is large compared to the bubble size. This is important because, then, at the resonance frequency, not only is the response of the bubble strong, but several bubbles (and potentially many) can be driven in phase, thus yielding a collective constructive contribution to the pressure field. This explains why a minute quantity of gas bubbles can

---

\*Electronic address: valentin.leroy@univ-paris-diderot.fr

dramatically change the effective acoustic properties of a liquid.

If the bubble is no longer in a liquid, but in an elastic medium with shear velocity  $u_0$ , its resonance frequency becomes [5, 6]:

$$\omega_M = \frac{\sqrt{3v_1^2\rho_1/\rho_0 + 4u_0^2}}{R}, \quad (1)$$

so the same condition of small radius with respect to wavelength persists as long as the elastic medium is a soft solid in which  $u_0 \ll v_0$ . As a result, elastic bubbly media are also good candidates as model systems for investigating wave propagation in the presence of low frequency resonances. In addition, they offer two practical advantages compared to bubbly liquids: (1) bubbles do not move, which means that a precise knowledge of their positions can be obtained; (2) the frequency of the resonance can be shifted by tuning the shear velocity in the elastic matrix. Bubbly soft media with negligible shear velocity have already been studied [7–9], and the ISA was found to reliably predict the experimental results, at least for concentrations of bubbles up to 1%. The present article focuses on a bubbly polydimethylsiloxane (PDMS) sample, in which the shear modulus is expected to significantly change the bubble's response to the incident ultrasonic field and the propagation of waves in the medium. Our aim is to see if the ISA is still relevant in this case. Beyond the fundamental aspect of the study, and the potential applications for design of metamaterials, it should be noted that a better understanding of the acoustic properties of bubbly elastic media is interesting *per se*, since many practical applications, in the medical or the food science fields for instance, involve the presence of bubbles in a soft elastic matrix.

The present paper is organized as follows. The next section gives a brief overview of the ISA, with a focus on its application to acoustic propagation in bubbly media. Then we describe how our bubbly samples were made and characterized. Section IV reports the experimental measurements of velocity and attenuation in one typical sample, and compares the experimental results with the ISA. Two main limitations of the model are also discussed: the assumption of sample homogeneity on length scales larger than the scatterer size (e.g., gradients in the concentration of the scatterers) and the neglect of correlations in the positions of the scatterers. Methods for overcoming these limitations are proposed.

## II. THE INDEPENDENT SCATTERING APPROXIMATION

Based on a diagrammatic representation of scattering events [10], the ISA predicts the following effective wavenumber  $k$  for a medium with  $n$  scatterers per unit volume defined by their scattering function  $f_s$ :

$$k^2 = k_0^2 + 4\pi n f_s, \quad (2)$$

where  $k_0$  is the wavenumber in the pure medium (matrix). The ISA is actually equivalent to the model developed, with another approach, by Foldy in 1945 [11]. In the following, we will use equally “ISA” or “Foldy’s model” when referring to equation (2).

In eq. (2), the effect of the scatterers on propagation in the pure medium is described by a term proportional to  $n f_s$ , *i.e.*, a simple addition of the individual scattering events, which are assumed to be independent. Models have been proposed for incorporating either the correlations between the scatterings [12] or the loops, *i.e.*, the events in which the same scatterer or spot inside the sample is visited more than once by the wave [13, 14]. We discuss only the ISA in this section, since it is the simplest model and it gives reasonable predictions of wave transport in many cases. We will introduce later, in section IV C and the appendix, extensions to the ISA for dealing with the positional correlations of the scatterers.

Equation (2) considers a monodisperse assembly of scatterers. In practical applications, one is often dealing with polydisperse media, in which case the ISA predicts that

$$k^2 = k_0^2 + \int 4\pi n(R) dR f_s(R), \quad (3)$$

where  $n(R)dR$  is the number of bubbles per unit volume whose radius is between  $R$  and  $R + dR$ , and  $f_s(R)$  is the scattering function for a scatterer of radius  $R$ .

Let us apply the ISA to a bubbly medium. When the scatterer is a bubble, its isotropic scattering function is given by

$$f_s(\omega, R) = \frac{R}{(\omega_M/\omega)^2 - 1 + i\delta}, \quad (4)$$

where  $\delta$  is the damping constant due to thermal, viscous and radiative losses [15] and  $\omega_M$  the resonance angular frequency given by Eq. (1), which can be written

$$\omega_M^2 = \frac{3\kappa P_1 + 4\mu'}{\rho_0 R^2}, \quad (5)$$

with  $\kappa$  the polytropic index for the transformations undergone by the gas [15] ( $\kappa = 1.4$  for air),  $P_1$  the pressure of the gas in the bubbles,  $\rho_0$  the mass density of the matrix, and  $\mu'$  the real part of the shear modulus of the matrix. Surface tension effects are negligible for the bubble size considered in our experiments. Mode conversion is not considered in this model since it has been shown to be negligible for this system on account of the large difference between the shear modulus of the matrix and the longitudinal one ( $u_0 \ll v_0$ ) [16]. Hence the only significant contribution of the nonzero shear modulus is its effect on the resonance frequency of the bubble, which is increased by the stiffness of the matrix. Another approximation we make is to reduce the scattering function to its isotropic component, neglecting the dipolar and higher contributions. This approximation is generally good when the wavelength is large compared to the



size of the scatterers, and it will be shown to be accurate for describing our experiments.

In figure 1, we give two examples of the effective attenuation and velocity as functions of the frequency, as calculated by Foldy's model. For the sake of generality, we consider log-normal distributions of bubble size:

$$n(R) = \frac{n_0}{\sqrt{2\pi}\epsilon R} \exp\left(-\frac{(\ln R/R_0)^2}{2\epsilon^2}\right), \quad (6)$$

where  $R_0$  is the median radius,  $\epsilon$  the width of the distribution, and  $n_0$  the bubble concentration. Note that for distributions that are not too broad ( $\epsilon < 0.2$ ), log-normal distributions are close to normal distributions: then  $R_0$  and  $\epsilon$  can be viewed as the mean radius and coefficient of variation (*i.e.*, standard deviation divided by the mean), respectively. The latter quantity, which we will refer to as the polydispersity factor, measures the range of bubble sizes in the distribution. The bubble concentration  $n_0$  is related to the gas volume fraction  $\Phi$  by

$$n_0 = \frac{3\Phi}{4\pi R_0^3 \exp(9\epsilon^2/2)}. \quad (7)$$

The bubble size distribution in Fig. 1 is described by  $R_0 = 150 \mu\text{m}$ ,  $\epsilon = 25\%$  and  $\Phi = 2\%$ . Two host media are considered: water (dashed lines), and an elastic matrix with  $\mu' = 0.7 \text{ MPa}$ ,  $\mu'' = 0.4 \text{ MPa}$  (solid lines). For both media, very dispersive behavior is predicted: the attenuation and velocity show peaks, which occur at higher frequencies in the elastic medium.

At low frequencies ( $\omega < \omega_M$ ), sound propagation in the bubbly medium is weakly attenuated, and its very low phase velocity is accurately predicted by Wood's relation [17], modified to account for the elastic effects. For  $5 \times 10^{-4} < \Phi < 10^{-1}$ , this relation can be approximated (within 5%) as

$$v_{\text{lf}} \simeq \sqrt{\frac{\kappa P_1 + 4\mu'/3}{\rho_0 \Phi}}, \quad (8)$$

where  $P_1$  is the pressure of the gas in the bubbles and  $\rho_0$  the density of the matrix. Eq. (8) gives, in our example,  $v_{\text{lf}} = 122$  and  $248 \text{ m/s}$  in water and the elastic matrix, respectively.

Near the Minnaert frequencies of the bubbles, the acoustic waves are highly attenuated by the bubbly medium: the attenuation reaches a peak  $\alpha_{\text{max}}$  at frequency  $f_{\text{max}}$ , corresponding to the resonance frequency for a monodisperse distribution. In water, the peak is very sharp and associated with the bubble resonances ( $f_{\text{max}} = 22 \text{ kHz}$  as expected by Eq. (5) for a  $150\text{-}\mu\text{m}$ -radius bubble). Eqs. (2) and (4) give the physical origin of this sharp peak: at resonance, the scattering function  $f_s$  is large and imaginary, which leads to a large imaginary part of the effective wave number  $k$ . This sharp resonant effect is followed by a broader regime (roughly 60–400 kHz in our example) in which the attenuation is still large. This is explained by the negative response of

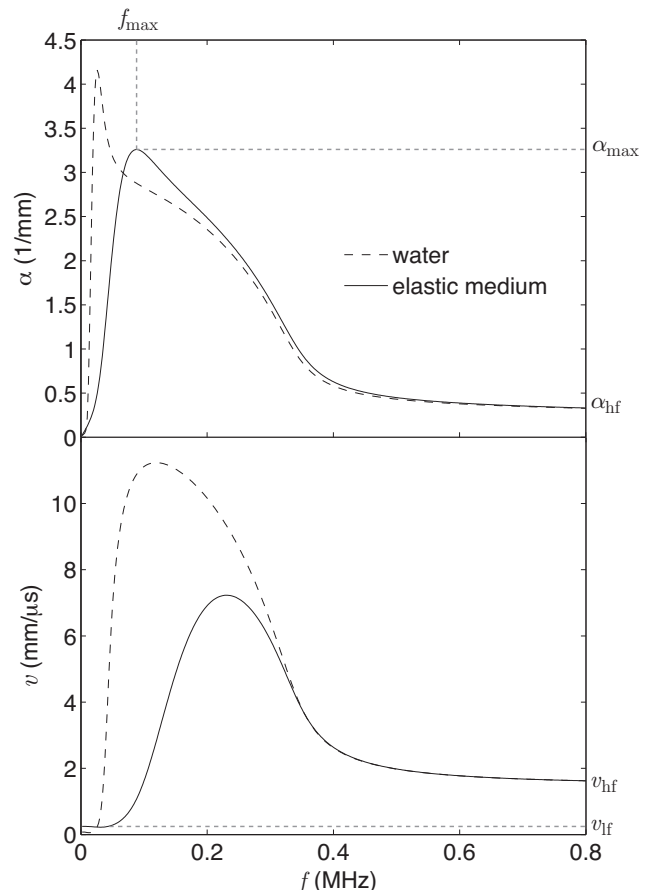


FIG. 1: (Color online) Predictions of the ISA for the attenuation  $\alpha$  (top) and phase velocity  $v$  (bottom) as functions of frequency for bubbles in water (dashed lines) and in an elastic matrix (solid lines) with  $\mu' = 0.7 \text{ MPa}$ ,  $\mu'' = 0.4 \text{ MPa}$ ; the bubble concentration is 2% and the mean radius is taken to be  $150 \mu\text{m}$  with a 25% polydispersity. The characteristic features ( $f_{\text{max}}$ ,  $\alpha_{\text{max}}$ ,  $\alpha_{\text{hf}}$ ,  $v_{\text{lf}}$ , and  $v_{\text{hf}}$ ) are indicated.

the bubbles. Indeed, when driven at a frequency higher than its resonance frequency, a bubble has a scattering function which reduces approximately to  $f_s = -R$  when  $\delta \ll 1$  (see Eq. (4)). Even though the bubble is not resonating, its contribution is far from negligible. Indeed, one can rewrite Eq. (2) as

$$k^2 = k_0^2 \left(1 - \frac{R\lambda^2}{\pi d^3}\right), \quad (9)$$

where  $d$  is the typical distance between bubbles. As long as the wavelength is large compared to this distance ( $\lambda/d \gg 1$ ), the square of the effective wavenumber is negative: waves are evanescent. In our example of 2% bubbly water with  $150 \mu\text{m}$ -radius bubbles, the typical distance between bubbles is  $0.9 \text{ mm}$ , which means that  $R\lambda^2/(\pi d^3) > 1$  for  $f < 380 \text{ kHz}$ .

In our example of an elastic medium, the high viscosity ( $\mu''$  of  $0.4 \text{ MPa}$  corresponds, at  $0.1 \text{ MHz}$ , to a viscosity 640 times larger than that of water) tends to damp the



oscillations of the bubbles at resonance, so the attenuation peak is lower and less sharp (see figure 1). As a paradoxical consequence, the more viscous the medium in which bubbles are embedded, the lower the maximum of attenuation of sound. Note that the sharp peak of attenuation also disappears when the bubble size distribution is too broad. Interestingly, even if the resonant effects are too weak to give rise to significant resonant attenuation, they still lead to an evanescent regime. In this case, the position of the attenuation peak does not correspond to the resonance of the average size bubbles, but rather to a frequency that is just above the resonance frequency of the small bubbles of the distribution, as it corresponds to all the bubbles being driven at a frequency higher than their resonance frequencies. For instance, in our example  $f_{\max} = 90$  kHz for the bubbly elastic medium, which corresponds to a radius of  $100 \mu\text{m}$  according to Eq. (5).

When the resonances are smoothed out, an approximate formula can be established for the maximum of the attenuation:

$$\alpha_{\max} = \frac{2\sqrt{3}\Phi}{R_0 \exp(2\epsilon^2)}, \quad (10)$$

which has the benefit of depending only on the bubble concentration and size distribution (not on either the damping constant of the bubbles or the shear modulus of the matrix).

At higher frequencies, the evanescent regime disappears: the attenuation and velocity reach constant values, which can be approximated by:

$$\alpha_{\text{hf}} = \frac{3\Phi}{R_0 \exp(5\epsilon^2/2)}, \quad (11)$$

$$v_{\text{hf}} = v_0. \quad (12)$$

Interestingly, if Foldy's model applies, one can determine the 5 parameters  $\Phi$ ,  $R_0$ ,  $\epsilon$ ,  $\mu'$ , and  $v_0$  from the measurement of the 5 quantities  $v_{\text{lf}}$ ,  $f_{\max}$ ,  $\alpha_{\max}$ ,  $\alpha_{\text{hf}}$ , and  $v_{\text{hf}}$  in a bubbly medium.

### III. MATERIALS AND METHODS

#### A. Sample preparation

Samples were prepared by mixing 100 g of RTV 615 (GE Silicones, 90 g monomers and 10 g hardener) in a 600 mL beaker with a Sorvall Omni Mixer (Ivan Sorvall, Inc., Norwalk, CT; nominal operating speed 16,000 rpm) for 1 minute to incorporate bubbles. Then, after waiting for an interval of 10-20 minutes for the biggest bubbles to rise and disappear, the bubbly liquid was poured into a cell (thickness 2.6 mm, diameter 11 cm), which was rotated at 5 rpm to prevent creaming (bubbles rising to the top of the container). At room temperature, a solid sample was obtained in 1 day.

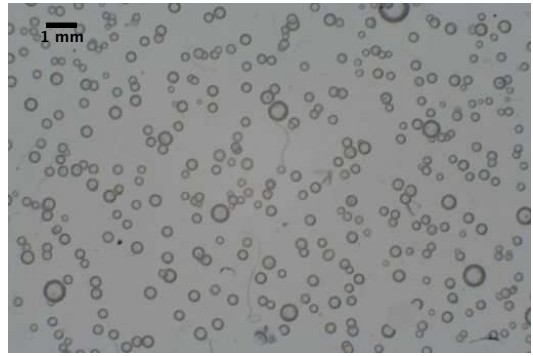


FIG. 2: (Color online) Example of an image taken for the bubble size analysis (optical characterization).

#### B. Sample characterization

Testing of Foldy's model requires that some of the parameters of the sample are known: the bubble size distribution ( $n(R)$ ), the matrix rheology ( $\mu$ ) and the velocity of sound in the matrix ( $v_0$ ).

*a. Optical characterization* was made by taking pictures at different positions in the sample. The depth of field was larger than the thickness of the sample, which means that the total volume of the image was known ( $16 \times 11 \times 2.6 \text{ mm}^3$ ). A typical image is shown in figure 2; the contrast was good enough for an automatic size analysis to be performed (ImageJ). The radius measurement was possible with a one pixel accuracy, *i.e.*,  $5 \mu\text{m}$ . A total of 839 bubbles was analyzed. To avoid biased measurements of big bubbles, overlaid bubbles were excluded from the size analysis. However, the total number of bubbles was determined (1098) for a correct estimation of the bubble volume fraction, assuming the same size distribution for the overlaid bubbles. The radius distribution was centred around  $165 \pm 5 \mu\text{m}$  with a polydispersity of  $21 \pm 1 \%$  and a volume fraction of  $2 \pm 0.2 \%$  (see histogram in figure 3).

*b. Rheological characterization* was necessary to measure the shear modulus over the frequency range used for the ultrasonic experiments (30-800 kHz). We used a shear wave reflection technique (see [18] or [19] for details) to measure the complex shear modulus  $\mu = \mu' + i\mu''$  from 300 to 500 kHz. For lower frequencies (around 30 kHz) an estimation of  $\mu$  was possible by measuring the acoustic response of a single bubble (see [20] for a description of the technique). Over the 30-500 kHz frequency range, our measurements are consistent with the following behaviour of the real ( $\mu'$ ) and imaginary ( $\mu''$ ) parts of the shear modulus:

$$\mu' = 0.6 + 0.7 \times f, \quad (13a)$$

$$\mu'' = 0.2 + 1.8 \times f, \quad (13b)$$

where the moduli are in MPa and the frequency  $f$  in MHz. Equations (13) only give the order of magnitude of the shear modulus for a given RTV615 sample. In-

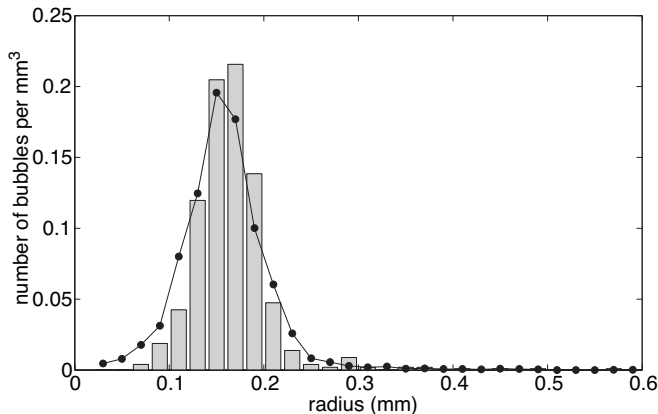


FIG. 3: (Color online) Histogram of the bubble radius distribution for the sample in figure 2, obtained from the image analysis. The superposed curve (circles plus connecting lines) corresponds to the result of the x-ray tomography analysis.

deed, the precise protocol used for preparation, such as the temperature and time of the hardening process for instance, may have a non-negligible impact on the modulus [21]. As a consequence, deviations from the predictions of Eqs. (13) can be observed for a given sample.

The stationary limit ( $f = 0$  MHz) of our estimate of  $\mu'$  is in good agreement with the value reported in the literature [21].

*c. Ultrasonic characterization* was also performed by standard techniques [8] to measure the velocity and attenuation of sound in the *pure* PDMS. The longitudinal velocity was found to be constant over the frequency range investigated (30 kHz - 5 MHz):  $v_0 = 1.02$  mm/ $\mu$ s, in accordance with previously reported values [22]. For the attenuation, the following law was found:  $\alpha_0 = 0.023 f^{1.54}$  mm $^{-1}$  (with frequency  $f$  in MHz).

*d. X-ray characterization.* To investigate the spatial distribution of the bubbles in one of the samples, x-ray tomography images were acquired, using an Xradia MicroXCT 3D x-ray transmission microscope (18  $\mu$ m/px). After the ultrasonic measurements, the sample was cut in pieces small enough to fit in the apparatus ( $7.5 \times 10 \times 2.6$  mm $^3$ ), and 21 pieces were imaged, for a total of 3700 bubbles. A software program was written to enable the reconstruction of the 3D structure of each piece: for every bubble  $i$ , its radius  $R_i$  and position  $[x_i, y_i, z_i]$  were determined with 1 pixel accuracy. The size distribution was determined and successfully compared to the results of the optical characterization: we found a mean radius of  $160 \pm 18$   $\mu$ m with a polydispersity of  $25 \pm 1$  % and a volume fraction of  $2.2 \pm 0.3$  % (see figure 3 and table I). Moreover, the 3D data gave insight into the homogeneity of the sample, as well as on the correlations in the bubble positions, as described in sections IV B and IV C.

TABLE I: Parameters of the bubble size distribution, extracted from the optical and x-ray measurements.

	volume fraction $\Phi$ (%)	average radius $\langle R \rangle$ ( $\mu$ m)	polydispersity $\frac{\sqrt{\langle R^2 \rangle - \langle R \rangle^2}}{\langle R \rangle}$ (%)
optics	$2.0 \pm 0.2$	$165 \pm 5$	$21 \pm 1$
x-ray	$2.2 \pm 0.3$	$160 \pm 18$	$25 \pm 1$

### C. Ultrasonic measurements

The acoustic properties of the samples were measured with the following set-up. In a large tank ( $60 \times 60 \times 120$  cm $^3$ ) filled with reverse osmosis water, a piezoelectric transducer generated a pulse that propagated through water, traversed the sample and was detected by a hydrophone. Because the attenuation in the sample was large, and because the divergence of the beam was not negligible (especially at low frequencies), the use of a screen was essential to reduce spurious signals. The aperture of the screen (6 cm) was larger than the wavelength of the pulse (3.75 cm at 40 kHz) to limit diffraction effects, but smaller than the diameter of the sample (11 cm).

Gaussian pulses, with central frequencies ranging from 40 to 600 kHz, were generated by an Arbitrary Wave Generator, and three different transducers, having central frequencies of 100, 250 and 500 kHz, were used to cover the range of frequencies. The pulses were recorded, with a hydrophone, in two different cases: when the sample was mounted on the screen ( $s_1(t)$ ), and when the sample was absent ( $s_2(t)$ ). The signals were averaged over 100 acquisitions when the attenuation was low (for reference measurements, for example), and up to 5000 acquisitions for highly attenuated signals. Signals  $s_1(t)$  and  $s_2(t)$  were then truncated to eliminate spurious echoes, and Fourier transformed into  $S_1(\omega)$  and  $S_2(\omega)$  respectively. Then,  $T(\omega)$ , the ratio of the transmission with and without the sample in the path of the acoustic beam at a given angular frequency, was calculated.

For an incoming plane monochromatic wave  $\exp(ikx - i\omega t)$ ,  $T(\omega)$  is given by

$$T(\omega) = \frac{4ZZ_w}{(Z_w + Z)^2} \times \frac{e^{i(k-k_w)d}}{1 - \left(\frac{Z-Z_w}{Z+Z_w}e^{ikd}\right)^2}, \quad (14)$$

where  $k$  and  $k_w$  are the wave numbers in the sample and in the water respectively,  $Z$  and  $Z_w$  the acoustic impedances, and  $d$  the thickness of the sample. Because the impedance  $Z$  depends on  $k$  ( $Z = \rho\omega/k$ , with  $\rho$  the mass density of the sample), equation (14) is not directly invertible to extract  $k$ : an iteration method was used [8]. From  $k$ , the phase velocity  $v = \omega/\text{Re}(k)$  and the attenuation  $\alpha = 2\text{Im}(k)$  can be calculated. Error-bars on the measurements were evaluated by taking into account the following sources of uncertainty: thickness of the sample,

noise in the Fourier transforms, truncation of the time pulse.

An important issue in measuring the acoustic properties of a medium is the statistical relevance of results for a single sample. Theories predict the average properties, *i.e.*, what one can measure when averaging over different samples having the same general parameters. To obtain insight on this issue, we measured the transmitted signal not only in the centre of the acoustic beam, but also on a  $7 \times 7$  grid with a 5 mm step. From this scanning, a “typically averaged signal” could be obtained (with correction for the geometrical differences), and this was compared to the centre pulse.

#### IV. EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION

Several bubbly PDMS samples were tested, with different void fractions (0.5-3.5 %) and polydispersities (20-50 %), but with the same average radius (around  $150 \mu\text{m}$ ). In this article, we focus on representative results obtained with one selected sample, which was characterized by x-ray tomography. Figure 4 shows the measured attenuation and phase velocity in the sample as functions of the frequency. The general aspect of the curves follows what one would expect for a bubbly medium (see figure 1): both the attenuation and the velocity exhibit peaks in frequency with very large values at their maxima ( $3.5 \text{ mm}^{-1}$  and  $4.5 \text{ mm}/\mu\text{s}$ , respectively), the velocity is low ( $0.26 \text{ mm}/\mu\text{s}$ ) at low frequencies, and close to the value in the pure PDMS at higher frequencies. Note that two cases are considered: when only one pulse is analysed (open circles) and when the average is made over the 49 positions of the hydrophone (solid circles). Except for the peak in velocity, both analyses give similar results. It indicates that substantial information can be obtained from a single pulse measurement, which is interesting for practical purposes. Note that measurements are difficult when the velocity is high because small time shifts have to be extracted from the phase shift which is dominated by the complex impedance rather than the transit time.

The five typical quantities introduced in section II can be measured and compared to equations (5), and (8)-(12), calculated with the parameters found in section III B. As shown in table II, the agreement is rather satisfying:  $f_{\text{max}}$  and  $\alpha_{\text{hf}}$  are within 10% and the other quantities within 20%. Note that for  $v_{\text{lf}}$  and  $v_{\text{hf}}$  the measured values may not correspond exactly to the asymptotic values because of the limited range of frequencies in the measurements.

##### A. Comparison with ISA

Figure 5 offers a further step in the comparison process. Predictions of the ISA model are plotted as dotted lines.

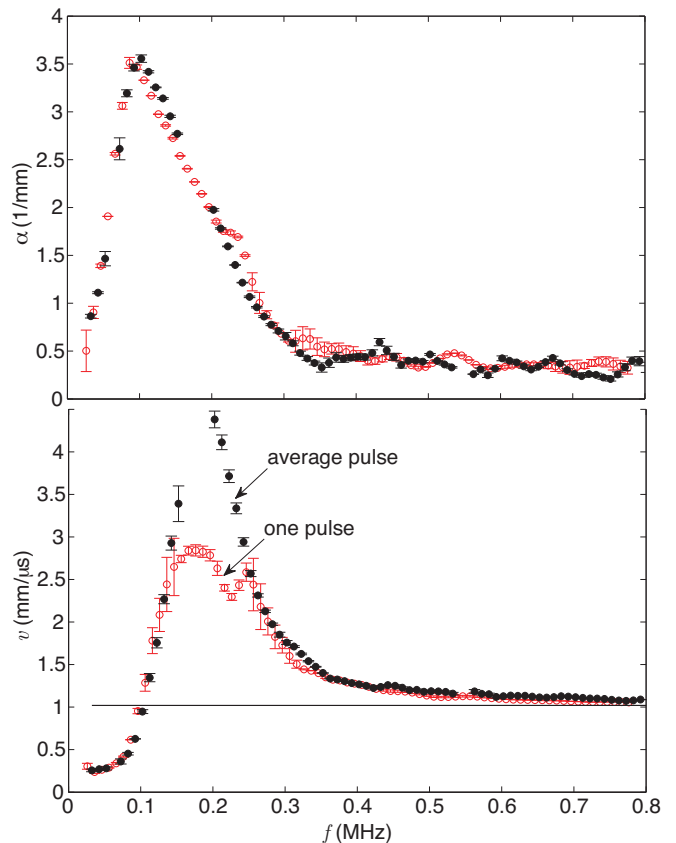


FIG. 4: (Color online) Attenuation  $\alpha$  and phase velocity  $v$  in the bubbly PDMS sample, measured from a single pulse (open circles) and from an average pulse (solid circles). The velocity in the pure PDMS is shown by the solid line. The attenuation in pure PDMS is, on average, 2 orders of magnitude less than in the bubbly sample (too small to be visible on the graph).

TABLE II: Five characteristic quantities measured experimentally (first line), and predicted by the model (second line).

	$f_{\text{max}}$ (kHz)	$\alpha_{\text{max}}$ ( $\text{mm}^{-1}$ )	$\alpha_{\text{hf}}$ ( $\text{mm}^{-1}$ )	$v_{\text{lf}}$ (m/s)	$v_{\text{hf}}$ (m/s)
exp.	100	3.5	0.40	260	1180
mod.	$90^a$	2.8	0.35	224	1020

<sup>a</sup>Calculated with Eq. (5) by taking the radius of the small bubbles of the distribution (*i.e.*,  $100 \mu\text{m}$ , see figure 3). This is appropriate since for polydisperse distributions of sizes, the peak in attenuation corresponds to the resonances of the smaller bubbles, as noted in section II.

Parameters for the model were taken as measured in section III B, the histogram measured in the x-ray experiment being chosen for  $n(R)$ . In the low and high limits of the frequency range, the comparison is good. However, the attenuation and velocity peaks are not correctly predicted: their frequencies and amplitudes are both smaller than the experimental data. Note that this discrepancy

was observed for all the samples we investigated. The comparison is slightly better when the dipole terms in the bubbles' responses are considered (solid lines) but the discrepancy in the peaks' positions and magnitude is still large. Higher order scattering has negligible contributions.

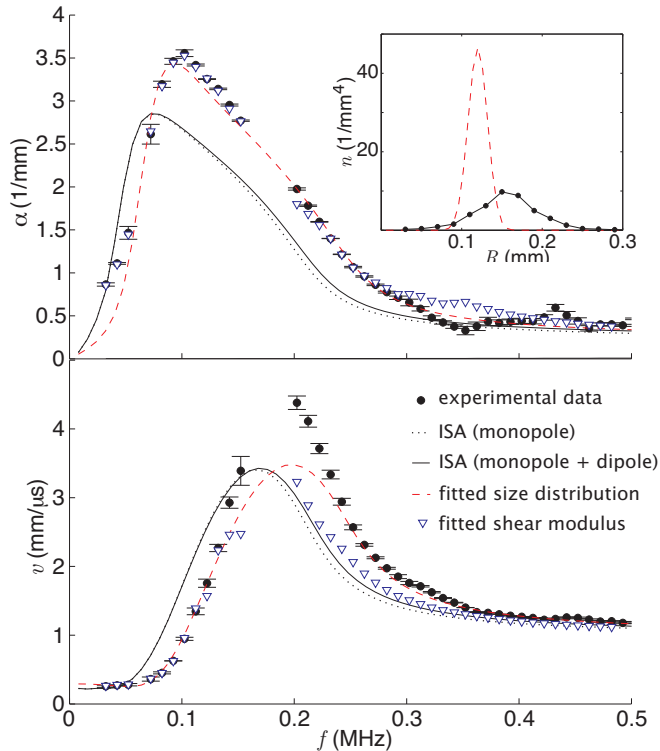


FIG. 5: (Color online) Close-up of the attenuation and velocity peaks. Solid circles correspond to experimental data (same as in Fig. 4). Comparison with Foldy's model is shown for monopolar scattering of the bubbles (dotted lines) and monopolar + dipolar scattering (solid lines). Note that there are no adjustable parameters in this comparison of the theory with experiment. Results of fitting the model to the data by allowing either the size distribution (dashed lines) or the shear modulus (triangles) to vary are also shown. In the inset, the size distribution determined by the x-ray experiment (solid line) is compared to the one inferred from the fit to the ultrasonic data (dashed lines).

To check whether the discrepancy could be explained by the uncertainty in the measured size distribution, we determined the  $n(R)$  function that was needed to achieve a better fit. As shown in the inset of Fig. 5, this leads to a totally unrealistic distribution, with smaller bubbles (mean radius  $120 \mu\text{m}$ ), a narrower distribution (10 % polydispersity), and a smaller void fraction (1.1 %). One can understand why such a size distribution is obtained by looking at equation (2). If the peaks are at too low frequencies and with too low amplitudes, it means that the  $n f_s$  term is not high enough compared to  $k_0^2$ , i.e., that the bubble contribution is too weak. A way of fixing this is to consider smaller bubbles, in order to shift the resonance

to higher frequencies, and to increase the number of bubbles per unit volume to magnify their contribution. This explains the difference between the fitted and the actual size distribution in figure 5 inset. An important practical application is that if one uses Foldy's model for fitting the experimental data, an incorrect bubble size distribution will be obtained. Note that the same phenomenon was observed for bubbles in bread dough, with the same trend of Foldy's model predicting bubbles smaller than those determined from x-ray measurements [23].

Another possible source of error was the shear modulus, whose measurement was not very precise. For each frequency, we determined the complex shear modulus that gave the best fit to the experimental data. As shown by the triangles in Fig. 5, a good fit was possible for the attenuation. For the velocity, the agreement was good for lower frequencies, but poor at higher frequencies. Moreover, as shown in figure 6, the fitting leads to unrealistic values for  $\mu'$  and  $\mu''$ . Again, one can qualitatively understand these values: the real part of the fitted shear modulus is high in order to shift the peaks to higher frequencies, and the imaginary part is low (even zero) so that the oscillations of the bubbles are not damped by viscosity, and the scattering function  $f_s$  is large.

These results suggest that Foldy's model is inadequate for describing wave propagation in the PDMS sample. In the following we examine two possible explanations, and propose a model to account for these discrepancies.

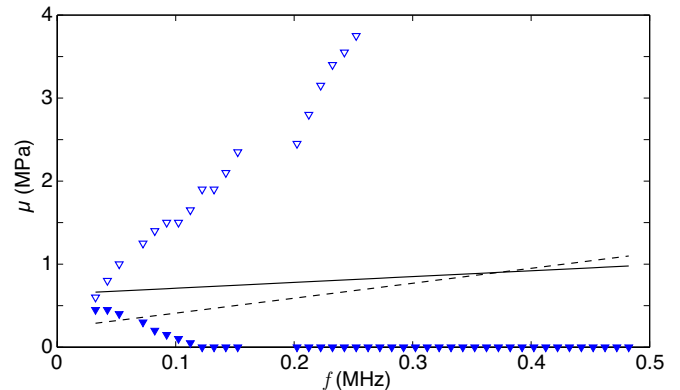


FIG. 6: (Color online) Shear moduli as functions of frequency. The lines correspond to the results for experimental  $\mu'$  (solid line) and  $\mu''$  (dashed line), as given in equations (13). Open triangles show the fitted values for  $\mu'$ , solid ones for  $\mu''$ .

## B. Homogeneity of the sample

An important hypothesis made in all the effective medium models consists in assuming that the sample is homogeneous, i.e., any part of the sample can be considered as equivalent to the others. The x-ray inspection of the sample reveals a homogeneous structure in the transverse directions, but a non-homogeneous one along



the thickness. Probably because of the upward buoyancy force exerted on the bubbles during the filling of the cell, the concentration of bubbles is varying, as shown in Fig. 7: the bottom part of the sample is free of bubbles, whereas the top part has a higher concentration. The bubble size distribution is also slightly different from one layer to the other.

We investigated the influence of this heterogeneity of the sample on the acoustic propagation. Each layer  $i$  ( $1 < i < 50$ ) of thickness  $d = 52 \mu\text{m}$  was considered as an effective medium following Foldy's model with a concentration  $n'/d$  and a bubble size distribution as measured by the x-ray tomography. Following Brekhovskikh [24], we computed the transmission through this multi-layer system, and compared it to the experimental transmission. Figure 8 shows the result: accounting for the inhomogeneity of the bubble concentration with the 50 layer model does not change the prediction much, implying that the heterogeneity of the bubble concentration plays a negligible role in acoustic wave propagation through the medium.

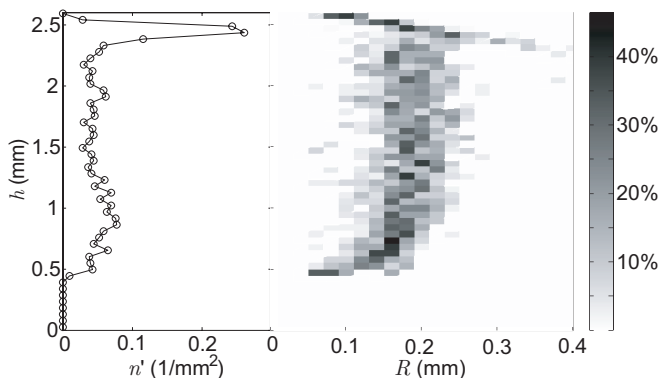


FIG. 7: (Color online) The layered structure of the sample is revealed by the x-ray tomography. Along the thickness  $h$  of the sample, we report the number of bubbles per unit area  $n'$  (left) and the radii distribution histogram (right) for each layer.

### C. Positional correlations

Another approximation in Foldy's model is the assumption that the positions of the scatterers are uncorrelated. Recent experiments in a 2D system of steel rods in water have shown that Keller's approach results in a very good correction to the model when correlations needed to be included [25]. In Keller's approach, the effective wave vector is related to the correlation function by:

$$k^2 = k_0^2 + 4\pi n f_s - (4\pi n f_s)^2 \int (1 - g(r)) \frac{\sin kr}{k} e^{ik_0 r} dr \quad (15)$$

where the correlations are taken into account by a radial function  $g(r)$  such that the local concentration of scat-

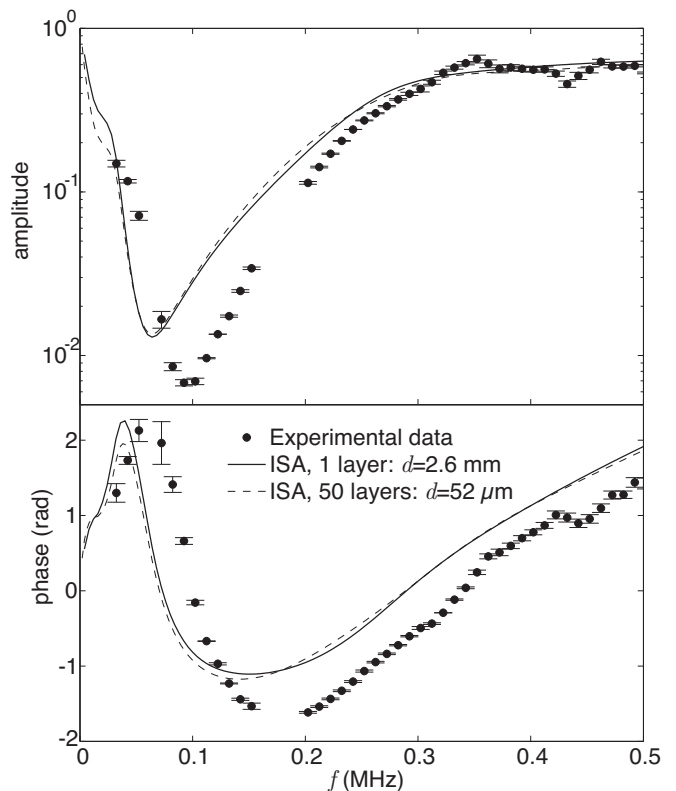


FIG. 8: (Color online) Amplitude (top) and phase (bottom) of the acoustic transmission through the sample. Because the data are the same as in figure 5, the same discrepancy between Foldy's prediction for a homogenous sample (solid lines) and the experimental data (circles) is obtained. The prediction for a layered medium (dashed lines) does not bring better agreement.

terers at a distance  $r$  from a scatterer is  $n(r) = n_0 g(r)$ , where  $n_0$  is the average concentration. For point-like scatterers,  $g = 1$  and Foldy's approximation is recovered. For hard spheres,  $g = 0$  for  $r < 2R$  and 1 at larger distances. In general,  $g$  can take more complicated forms, depending on the correlation mechanisms involved in the medium.

From the x-ray tomography data, we were able to estimate the function  $g$  for our sample. The general procedure for measuring such a function involves the following steps. First, one considers a sphere of radius  $r_N$  around one bubble and counts the number of bubbles in each spherical layer between  $r_i$  and  $r_{i+1}$ . Then, averaging over different central bubbles gives a statistical estimate of  $g(r)$ . However, a limit of this technique is that the bubbles chosen as centres of the spheres cannot be at less than  $r_N$  from an edge of the sample. Thus, if one wants to investigate long-range correlations by taking high values of  $r_N$ , the statistics are poor because the number of bubbles that are far enough from the borders is small. For our thin sample, this limitation was severe. To circumvent this problem, we used 1/8 of each sphere, with

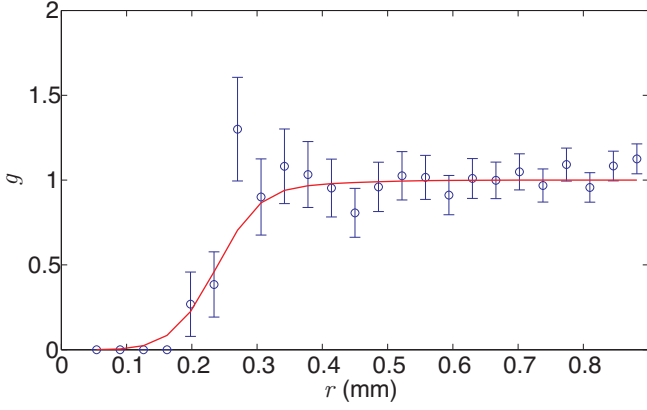


FIG. 9: (Color online) Function  $g$  as measured from the x-ray tomography data (circles). Error-bars correspond to one standard deviation. The solid line corresponds to the hard-sphere approximation for the bubble size distribution measured in the sample.

an orientation chosen so that its volume did not cross any boundaries of the sample. Figure 9 shows the result of these measurements up to a maximum distance of 0.9 mm. It appears that the  $g$  function is very similar to the predictions of the hard-sphere approximation (solid line). Note that the oscillations in the  $g$  function that are predicted by the frequently used Percus-Yevick approximation [25] are not expected to be significant here because the concentration of scatterers is low. Numerical simulations with random positions of scatterers in a box confirm that a simple hard-spheres law is a good approximation for a 2% volume fraction.

The predictions of Keller's model for the attenuation and velocity in the sample are shown in Fig. 10 for three different  $g$  functions. When the hard sphere approximation is used (*i.e.*, the solid curve of Fig. 9 is taken), one obtains the dashed lines, which only give a slightly better agreement than the ISA. From the measured correlations, we also consider the high limit (*i.e.*, the experimental points plus one standard deviation) and the low limit (*i.e.*, the experimental points minus one standard deviation) for the  $g$  function. They give different corrections: while the former gives a worse agreement, the latter improves it. One can understand this difference qualitatively by re-writing equation (15) as

$$k^2 = k_0^2 \left[ 1 + \frac{4\pi n f_s}{k_0^2} \left( 1 - 4\pi n f_s \int (1-g)r dr \right) \right], \quad (16)$$

where the reasonable approximations  $kr \ll 1$  and  $k_0 r \ll 1$  have been made. It is important to note that, in the frequency range over which the discrepancy is high, the bubbles are responding in phase opposition to the pressure field, *i.e.*  $\text{Re}(f_s) < 0$ . So, according to equation (16), the correlations increase the effect of the bubbles on  $k$  if  $g < 1$ , whereas they decrease it if  $g > 1$ . Note that a simple criterion can be deduced from Eq. (16) to estimate

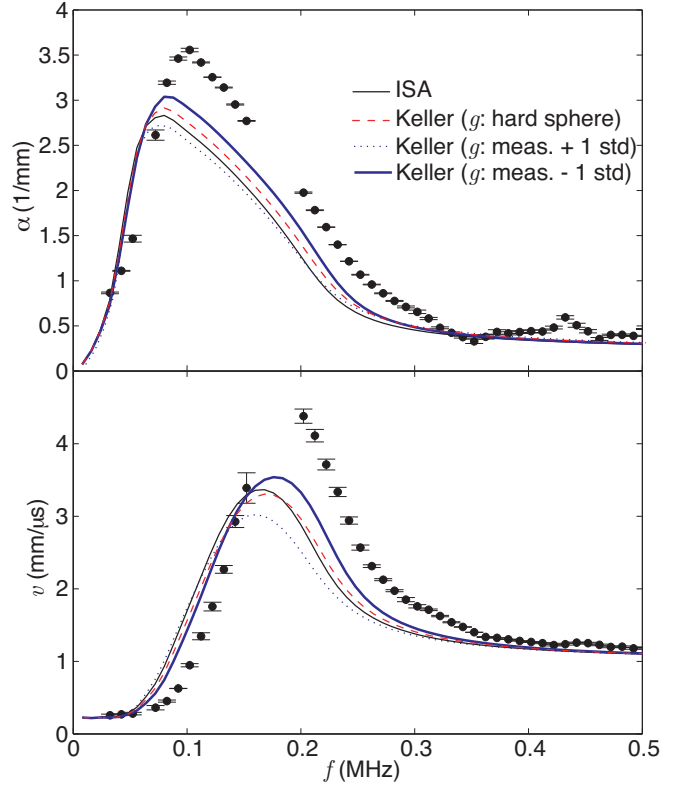


FIG. 10: (Color online) Investigation of the effect of correlations. The experimental attenuation and velocity (circles) and the ISA prediction (solid thin lines) are shown again, as in figure 4. Keller's approach (Eq. (15)) is plotted for the hard-sphere correlation (dashed lines), for the high estimation of  $g$  measured from the x-ray data (dotted lines), and for the low estimation of  $g$  (thick solid lines).

the importance of the corrections due to correlation. If  $g$  is roughly described as a step function going from 0 to 1 at distance  $r_c$ , the term with the integral in Eq. (16), which we will denote as  $\beta$ , reduces to

$$\beta = \frac{3}{2} \Phi \frac{f_s}{R} \left( \frac{r_c}{R} \right)^2. \quad (17)$$

Thus, the magnitude of the correction depends on the ratio of  $r_c$  to the radius of the bubbles  $R$ . Long-range correlations are thus expected to have a stronger effect.

It appears that Keller's approach, with a reasonable estimate of the  $g$  function, introduces a correction that goes in the right direction for better agreement. But the agreement is still unsatisfactory. Moreover, Keller's expression applies to a monodisperse medium, whereas our bubbly PDMS is a polydisperse sample. So far, we have assumed that the polydispersity could be taken into account by changing  $n f_s$  into  $\int n(R) dR f_s(R)$  in the equations. However, as we show in appendix A, a self-consistent approach provides a more general expression (see equation (A7)), in which the correlations depend on the size of the scatterer:  $g(r)$  becomes  $g(r, R)$ . To exam-

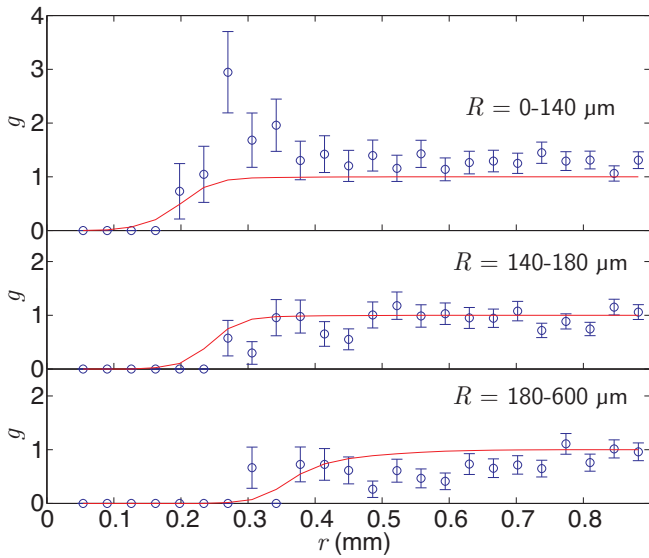


FIG. 11: (Color online) Function  $g(r, R)$  as measured from the x-ray tomography data (circles) on three populations of bubble radii. Error-bars correspond to one standard deviation. The solid line corresponds to the hard-sphere approximation for the bubble size distribution measured in the sample.

ine this polydispersity effect, we considered 3 different populations of “central” bubbles: 0-140  $\mu\text{m}$ , 140-180  $\mu\text{m}$ , and 180-600  $\mu\text{m}$ . For each population, we were able to average over approximately 1000 bubbles, ensuring good statistics. Figure 11 shows the  $g$  functions obtained for these 3 populations. For the small bubbles, there is a clear maximum of the  $g$  function. This is an indication of clusters. A close inspection of the picture in figure 2 indeed gives the impression that the small bubbles are clustered. For the average size bubbles, the  $g$  function is similar to the hard-sphere approximation. For the big bubbles, we find evidence of depletion: there is a lower probability of finding a bubble close to a big one. Again, note that the photo in Fig. 2 shows isolated big bubbles.

Figure 12 shows the predictions of our self-consistent approach (SCA) when 3 different possibilities are considered for  $g(r, R)$ : hard sphere approximation (solid lines in Fig. 11), and the measured values of  $g$  including the low and the high limits (bottom and top of the error bars in Fig. 11). It appears that the effects observed in Fig. 10 are amplified when the polydisperse correlation is taken into account. Interestingly, even for the hard sphere approximation, slightly better agreement is found (see table III). This can be explained by the following argument: large bubbles scatter more than small bubbles (see equation (4)), and their average correlation distance  $r_c$  is also larger.

When the range of measured values of  $g$  is considered, the agreement is better or worse, depending on whether the high or the low limit of the possible  $g$  function is considered. It follows that, given the precision of our correlation measurements, we cannot conclude whether

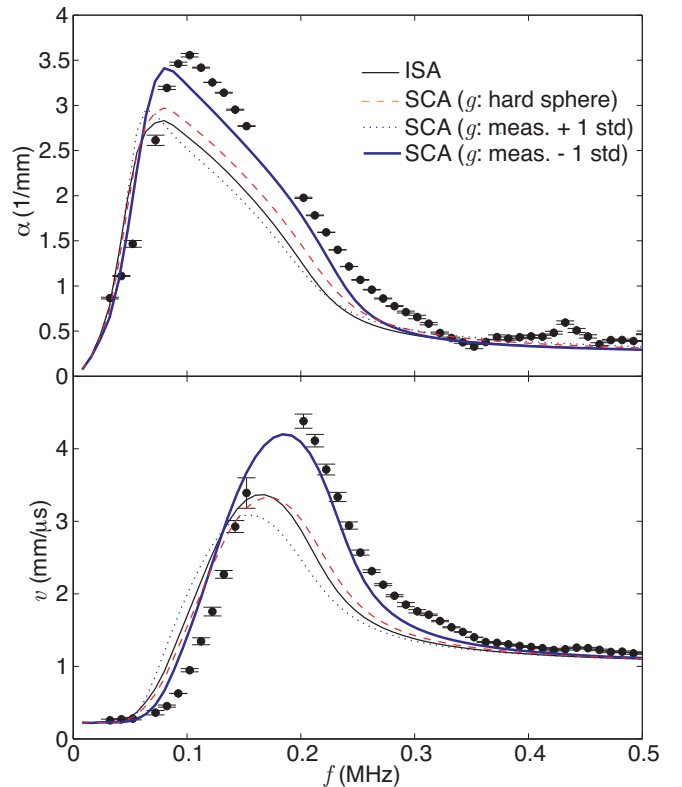


FIG. 12: (Color online) The effect of polydisperse correlations as predicted by the self-consistent approach (SCA). Three  $g(R, r)$  functions are considered (see figure 11): hard-sphere correlation (dashed lines), high and low estimates of  $g$  measured from the x-ray data (dotted and thick lines, respectively).

TABLE III: A simple criterion for estimating how well the predictions of the different models agree with the experimental data: the relative mean squared differences between theoretical and experimental effective wavenumbers (average of the imaginary and real parts) over the 30-300 kHz frequency range. Different  $g$  functions are considered: from the hard-sphere approximation (hs), and from the measured correlation (see Fig. 11) with the lower (xp-) middle (xp) and upper (xp+) estimates.

Model	ISA	Keller				SCA			
$g$	/	hs	xp -	xp	xp +	hs	xp -	xp	xp +
(%)	14.8	11.3	7.3	12.4	17.7	10.1	4.3	10.8	19.6

or not the polydisperse correlations are sufficient to fully explain the discrepancy. Nonetheless, we find that plausible values for  $g$  are able to give good agreement. A more precise determination of the correlations would be necessary for a definitive conclusion to be drawn.



## V. CONCLUSIONS

We have investigated wave propagation through a complex medium in which low-frequency scattering resonances lead to strong dispersion, with large peaks in the velocity and attenuation. By choosing to work with a relatively simple acoustic system – bubbles in the elastic medium PDMS – we have shown how these signatures of strong resonant scattering are influenced by the coupling between the scatterers. This leads to the breakdown of the independent scatterer approximation (ISA), which is commonly used to interpret experimental data. A crucial step in investigating the failure of the ISA in this system has been our ability to characterize the physical properties of bubbly PDMS very carefully, including independent measurements of the elastic properties of the matrix as well as the concentration and size distribution of the scatterers. Remarkably, we find that this failure of the ISA occurs even though the concentration of scatterers is low, only 2% in our case. It is worth noting one important consequence: if the ISA is used to estimate the size distribution of the scatterers, significantly smaller sizes are found than by direct imaging methods.

In this paper, we have proposed that this discrepancy can be explained by accounting for the role of correlations in the scatterers' positions, which we were able to probe directly using x-ray tomography. Following Keller's approach, we have shown that these correlations brought a non-negligible correction to the ISA, and that the agreement with the experimental data was improved, although not perfect. We have proposed an alternative approach, based on a self-consistent argument, with which we were able to take into account the effect of polydispersity on the correlations: bubbles of different radii are not correlated with their neighbours in the same way. Again, x-ray tomography allowed us to investigate this polydisperse correlation, which was found to be different from the monodisperse estimate: small bubbles are more likely to be close to other bubbles, whereas big bubbles are often isolated. We have shown that, within the possible polydisperse correlations that are consistent with our x-ray measurements, the SCA was able to provide a satisfactory explanation for the observed shift to higher frequencies in the acoustic resonances in the sample. It should also be noted that our model could be refined to account for more complex situations. In particular, when the correlations are long-range in a thin sample, one can expect the boundaries to play a role in the correlation, an effect we did not incorporate. Also, we looked at correlation effects or inhomogeneity effects, but we have not considered the case in which both effects are coupled.

An interesting question is the following: why are correlations important in the bubbly medium studied here, whereas they have not been detected before for bubbles in water [26] or bubbles in a yield stress fluid [8]? According to equation (17), the magnitude of the correction due to the positional correlations is proportional to the volume fraction of scatterers  $\Phi$ , which was generally lower in pre-

vious studies ( $5 \times 10^{-4}$  to  $10^{-2}$  at most), so that  $\beta$  would be expected to be low. However, it is interesting to note that some previous studies did report deviations between Foldy's prediction and the experimental data that might be interpreted as a manifestation of correlation effects. In the historical data by Silberman [27], for instance, the measured attenuation was much larger than Foldy's estimate. Feuillade proposed that the discrepancy could be resolved by introducing an arbitrary fitting parameter [28] that one can interpret as a correlation length (see the appendix). Wilson *et al.* also observed deviations from Foldy's estimate, as their attenuation peak was at a lower frequency than what was expected from the size analysis (see Fig. 10 in [26]). They attributed this discrepancy to the uncertainty in their measurement of the bubble size distribution, but one can imagine that correlation effects were responsible for this shifting of the attenuation peak. Indeed, large depletion zones around bubbles have been observed in bubbly liquids [29], which would lead to positional correlations. In our sample, the exact mechanism leading to the positional correlations has not been identified unambiguously. Ostwald ripening might induce the disappearance of small bubbles close to bigger bubbles, hence leading to the isolated big bubbles we observed. Another possible scenario could involve the rotation of the cell when the sample was prepared. If one considers that only the buoyancy and the Stokes drag force are relevant (inertial forces were negligible in our set-up), a bubble is expected to move along a circle whose radius is inversely proportional to the rotation frequency, and proportional to the square of the bubble radius. The movement of the bubbles may induce hydrodynamic interactions leading to positional correlations. This hypothesis is supported by the observation of strong clustering when the cell was rotated at a lower speed (0.7 rpm), *i.e.*, when the radii of the circles followed by the bubbles were larger.

## Acknowledgments

Support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada is gratefully acknowledged. The authors wish to thank A. Derode, M. Devaud, T. Hocquet, and J.-C. Bacri for numerous discussions, as well as R. Jayaraman for his help in enabling the x-ray experiments to be carried out.

## Appendix A: Self-consistent approach for multiple scattering of waves

We propose a self-consistent approach for calculating the dispersion relation of a random multiply scattering medium, taking into account the positional correlations of the scatterers. Let us consider an infinite medium with  $n$  inclusions per unit volume. We limit ourselves to low frequencies such that the wavelength is large compared

to the size of the scattering inclusions, which means we can consider that the waves scattered by the inclusions are spherical: when scatterer  $i$  is excited by a wave with amplitude  $p_i$ , it generates a wave  $p_i f_s^i \exp(ik_0 r)/r$  at distance  $r$ , where  $f_s^i$  is its scattering function and  $k_0$  the wave number in the pure medium. The total field experienced by inclusion  $i$ , due to the other scatterers, is given by the self-consistent relation

$$p_i = \sum_{j \neq i} p_j f_s^j \frac{e^{ik_0 r_{ij}}}{r_{ij}}, \quad (\text{A1})$$

where  $r_{ij}$  is the distance between scatterers  $i$  and  $j$ . In the case of a finite number of scatterers, Eq. (A1) can be solved and all the  $p_i$  exactly computed. For an infinite number of inclusions, however, taking into account the full multiple scattering is a difficult task and the  $p_i$  are not easily accessible. In particular, the  $1/r$  range of the interaction means that no pair  $(i, j)$  can be neglected *a priori* in Eq. (A1).

Let us further simplify the problem by assuming that all the scatterers are identical ( $f_s^i = f_s$ ) and look for modes that take the form of plane waves propagating in the  $x$  direction:  $p_i = P \exp(ikx_i)$ , where  $k$  is the effective wave number we want to determine, and  $P$  the amplitude of the mode. Then, Eq. (A1) reduces, for scatterer  $i = 0$  arbitrarily chosen as the central one located at  $r = 0$ , to

$$1 = \sum_{j \neq 0} e^{ikx_j} f_s \frac{e^{ik_0 r_j}}{r_j} = f_s \sum_{j \neq 0} \frac{e^{i(kr_j \cos \theta_j + k_0 r_j)}}{r_j}, \quad (\text{A2})$$

where  $r_j$  is the distance to scatterer  $j$ , and  $\theta_j$  the angle between the direction of propagation and the position of scatterer  $j$  (see Fig. 13).

One can approximate the discrete equation by a continuous equation, taking into account the positional correlations with the pair correlation function  $g(r)$ :

$$1 = f_s \int d^3r \times n g(r) \frac{e^{i(kr \cos \theta + k_0 r)}}{r} \quad (\text{A3a})$$

$$= \frac{4\pi n f_s}{k} \int_0^\infty n g(r) \sin(kr) e^{ik_0 r} dr. \quad (\text{A3b})$$

Invoking a small imaginary part of  $k_0$  to preserve the convergence of the integral, one can then calculate the effective wave number:

$$k^2 = k_0^2 + \frac{4\pi n f_s}{1 + 4\pi n f_s \int (1 - g(r)) \frac{\sin kr}{k} e^{ik_0 r} dr}. \quad (\text{A4})$$

Note that equation (A4) reduces to Foldy's equation if the denominator is approximated by 1, and to Keller's equation if it is expanded to second order in  $n f_s$ . Interestingly, it has some similarities with the equation proposed by Feuillade, which was found to give excellent agreement

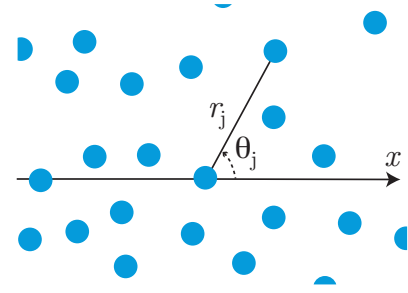


FIG. 13: (Color online) An infinite 3D medium with spherical scatterers is considered. The position of scatterer 0 is arbitrarily chosen as the centre of the coordinates and we look for modes of the system consisting of plane waves propagating in the  $x$  direction. The dispersion relation is obtained by calculating the total field experienced by scatterer 0 due to the other scatterers.

with experimental data for bubbly liquids (see equation (30) in [30]). Feuillade's model has been subject to criticisms [13, 31], in particular because, for unclear reasons, it assumes that the interactions between the scatterers are confined within a finite range. It might be that this finite range is related to correlations. Note that the approach we develop here is similar to Feuillade's. The differences are that (1) we abandon the assumption that all the scatterers are in phase, which is true only locally, and (2) we include the positional correlations.

For a polydisperse assembly of scatterers, the same self-consistent scheme can be used. In this case, the total field  $p_i$  depends *a priori* on the radius of the bubble,  $p_i = P(R_i) \exp(ikx_i)$ , meaning that equation (A3a) must be generalized into

$$P(R) = f_s(R) \int n(R') dR' P(R') \times \int g(r, R, R') \frac{e^{i(kr \cos \theta + k_0 r)}}{r} d^3r, \quad (\text{A5})$$

where  $g(r, R, R')$  gives the probability of finding a bubble with radius  $R'$  at a distance  $r$  from a central bubble with radius  $R$ . In the general case, equation (A5) cannot be directly simplified into a dispersion relation. However, if we assume that the correlation does not depend on  $R'$  ( $g(r, R, R') = g(r, R)$ ), a further integration over  $R$  yields

$$1 = \int n(R) f_s(R) dR \int g(r, R) \frac{e^{i(kr \cos \theta + k_0 r)}}{r} d^3r \quad (\text{A6})$$

from which we obtain the dispersion relation

$$k^2 = k_0^2 + \frac{\int 4\pi n(R) f_s(R) dR}{1 + A}, \quad (\text{A7})$$

with

$$A = \int 4\pi n(R) f_s(R) dR \int (1 - g(r, R)) \frac{\sin kr}{k} e^{ik_0 r} dr.$$

Note that, as in the ISA, polydispersity modifies the equation by changing  $nf_s$  into  $\int n(R)df_s(R)$ . But polydispersity also brings another non-trivial modification: the correlation can depend on the radius of the cen-

tral bubble considered, which makes different correlations possible for different bubble sizes, as in our bubbly sample.

- 
- [1] J. B. Pendry, Phys. Rev. Lett. **85**, 3966 (2000).
  - [2] Z. Liu, X. Zhang, Y. Mao, Y. Y. Zhu, Z. Yang, C. T. Chan, and P. Sheng, Science **289**, 1734 (2000).
  - [3] D. R. Smith, J. B. Pendry, and M. C. K. Wiltshire, Science **305**, 788 (2004).
  - [4] Z. Yang, J. Mei, M. Yang, N. Chan, and P. Sheng, Phys. Rev. Lett. **101**, 204301 (2008).
  - [5] V. N. Alekseev and S. A. Rybak, Acoustical Physics **45**, 535 (1999).
  - [6] E. A. Zabolotskaya, Y. A. Ilinskii, G. D. Meegan, and M. F. Hamilton, J. Acoust. Soc. Am. **118**, 2173 (2005).
  - [7] A. Strybulevych, V. Leroy, M. G. Scanlon, and J. H. Page, Soft Matter **3**, 1388 (2007).
  - [8] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, and M. G. Scanlon, J. Acoust. Soc. Am. **123**, 1931 (2008).
  - [9] V. Leroy, A. Strybulevych, M. G. Scanlon, and J. H. Page, Eur. Phys. J. E **29**, 123 (2009).
  - [10] P. Sheng, *Introduction to Wave Scattering, Localization and Mesoscopic Phenomena* (Academic Press, New York, 1995).
  - [11] L. L. Foldy, Physical Review **67**, 107 (1945).
  - [12] J. Keller, Proc. Symp. Appl. Math. **16**, 145 (1964).
  - [13] F. S. Henyey, J. Acoust. Soc. Am. **105**, 2149 (1999).
  - [14] M. Haney and R. Snieder, Phys. Rev. Lett. **91**, 093902 (2003).
  - [15] A. Prosperetti, J. Acoust. Soc. Am. **61**, 17 (1977).
  - [16] B. Liang and J.-C. Cheng, Phys. Rev. E **75**, 016605 (2007).
  - [17] A. B. Wood, *A Textbook of sound* (Bell, London, 1932).
  - [18] P. Y. Longin, C. Verdier, and M. Piau, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **76**, 213–232 (1998).
  - [19] V. Leroy, K. M. Pitura, M. G. Scanlon, and J. H. Page, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **165**, 475 (2010).
  - [20] A. Strybulevych, V. Leroy, M. G. Scanlon, and J. H. Page, in *Proceedings of Symposium on Ultrasonic Electronics* (2009), pp. 395–396.
  - [21] F. Schneider, T. Fellner, J. Wilde, and U. Wallrabe, J. Micromech. Microeng. **18**, 1 (2008).
  - [22] C. G. Delides and T. A. King, J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2 **75**, 359 (1979).
  - [23] V. Leroy, Y. Fan, A. L. Strybulevych, G. G. Bellido, J. H. Page, and M. G. Scanlon, in *Bubbles in Food 2: Novelty, Health and Luxury*, edited by G. M. Campbell, M. G. Scanlon, and D. L. Pyle (AACC Press, St Paul, 2008).
  - [24] L. M. Brekhovskikh, *Waves in layered media* (Academic press, New York, 1960).
  - [25] A. Derode, V. Mamou, and A. Tourin, Phys. Rev. E **74**, 036606 (2006).
  - [26] P. S. Wilson, R. A. Roy, and W. M. Carey, J. Acoust. Soc. Am. **117**, 1895 (2005).
  - [27] E. Silberman, J. Acoust. Soc. Am. **29**, 925 (1957).
  - [28] C. Feuillade, J. Acoust. Soc. Am. **99**, 3412 (1996).
  - [29] A. Cartellier and N. Rivière, Phys. Fluids **13**, 2165 (2001).
  - [30] C. Feuillade, J. Acoust. Soc. Am. **102**, 1242 (1997).
  - [31] Z. Ye, J. Acoust. Soc. Am. **102**, 1239 (1997).

## 2.4 Perspectives

L'histoire n'est clairement pas terminée. La figure 2.10 propose une synthèse des résultats des trois articles présentés dans ce chapitre. On y compare mesures expérimentales et prédictions de Foldy pour l'atténuation acoustique dans les trois types de milieux bulleux étudiés. Y figure également le critère de Waterman et Truell (WT) pour les 3 cas. On constate que le critère n'est pas très fiable puisque Foldy peut donner une bonne prédiction alors que  $1/k_0\ell_s \gg 1$  (fluide à seuil à résonance), ou s'écarter significativement de la mesure alors que  $1/k_0\ell_s \ll 1$  (pâte à pain à haute fréquence).

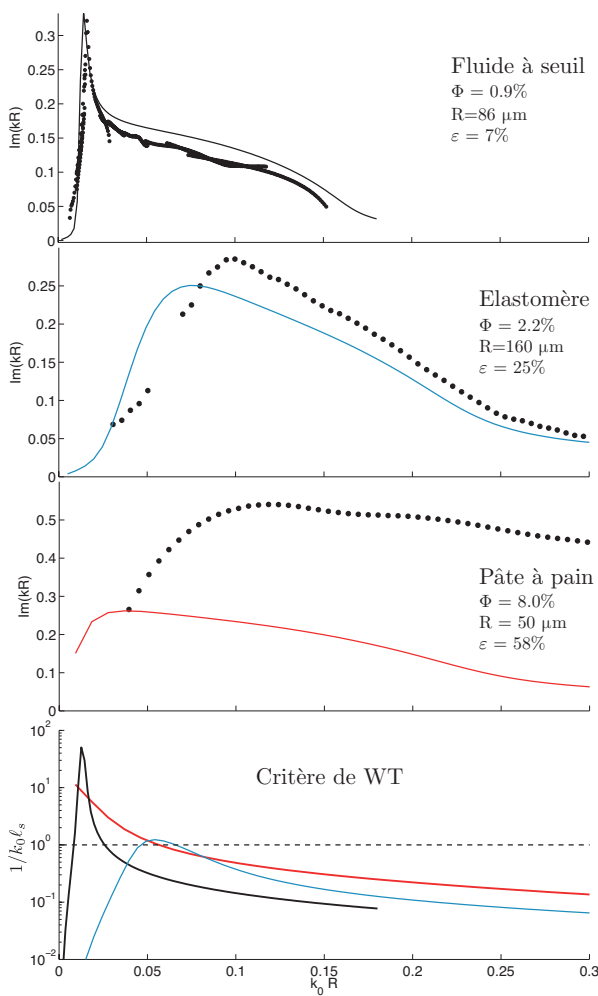


FIGURE 2.10 – Comparaison entre l'atténuation mesurée (symboles) et prédite par le modèle de Foldy (lignes continues) pour 3 types d'échantillons bulleux : dans un fluide à seuil, dans un elastomère, et dans une pâte à pain. On constate que la résonance du premier cas est bien prédite. Par contre, augmenter la fraction volumique de gaz ( $\Phi$ ), la polydispersité ( $\epsilon$ ) et le module de cisaillement du milieu ( $\mu$ ) met à mal l'accord avec le modèle. Le quatrième graphe présente le critère proposé par Waterman et Truell : les corrections à apporter à Foldy seraient de l'ordre de  $1/(k_0\ell_s)$ . Notons qu'on a tracé une version étendue du critère, pour tenir compte de la polydispersité :  $1/\ell_s = \int n(R)\sigma_s(R)dR$ , où  $n(R)dR$  est le nombre de bulles par unité de volume dont le rayon est compris entre  $R$  et  $R + dR$ .

Il faut donc répondre à deux questions.

**1- Pourquoi le modèle de Foldy semble fonctionner dans un fluide bulleux monodisperse à résonance ?** L'usage du terme “semble” s'impose parce qu'il n'y a pas encore de consensus sur la question. Encore récemment, des résultats numériques ont montré un écart significatif au modèle de Foldy, dans des conditions de concentration proches de celles de nos expériences [37]. Cela dit, plusieurs facteurs me confortent dans mon opinion que, en l'absence de corrélation de position, Foldy s'applique bel et bien à résonance :

- Nos résultats expérimentaux avec des milieux parfaitement caractérisés s'accordent bien au modèle de Foldy, sans paramètre ajustable.
- Les résultats de Wilson *et al.* s'accordent également bien [38], à une incertitude près sur le rayon exact des bulles.
- Les résultats de Silberman [27], abondamment repris dans la littérature, ont été acquis avec une méthode intrusive. Et même si les mesures sont correctes, l'écart observé pourrait provenir d'un effet de corrélation, sans avoir besoin d'invoquer une correction à l'aide de boucles.
- Des résultats préliminaires de simulations numériques, dans le cadre de la thèse de Maxime Lanoy, corroborent nos conclusions expérimentales.
- Enfin, le critère de WT, bien que séduisant, n'est peut-être pas si pertinent que cela. WT reconnaissent d'ailleurs que ce critère n'est qu'indicatif : *“One is tempted to infer that Eq. (2.20) is a generally valid criterion for the approximation we desire to make, although we have obviously not come close to proving such a statement.”* On reviendra sur cette question au chapitre suivant, en profitant de la géométrie plus simple du plan unique de bulles.

**2- Pourquoi Foldy ne fonctionne pas dans un milieu élastique bulleux polydisperse ?** La piste des corrélations est intéressante. On conçoit en effet que dans la pâte à pain et le PDMS, la répartition des bulles puisse avoir une structure particulière. D'abord du fait du mode de préparation des milieux : rotation de la cellule dans le cas du PDMS, étalement sur le système de mesure pour la pâte. Mais la grande polydispersité peut également jouer. En effet, dans une assemblée polydisperse, la différence de pression de Laplace entre les petites et les grandes bulles va faire disparaître les premières au profit des secondes. Ce genre de mécanisme peut faire apparaître des grosses bulles isolées, ce que révèlent les analyses des tomographies sur l'échantillon de PDMS bulleux (voir [figure 11](#) de l'article 3).

Pourtant, nos tentatives d'inclure les effets de la corrélation, avec un modèle de Keller modifié pour tenir compte de la polydispersité, ne sont pas totalement concluantes. Le principal problème est qu'une fonction de corrélation de paire sphérique  $g(r)$  ne peut pas se mesurer sur une longue distance dans un échantillon d'épaisseur  $d$  faible. On peut, au plus, aller jusqu'à  $r = d$ , et avec une statistique très faible. Une idée simple, mais pas encore testée, consisterait à étudier une fonction  $g(z, \rho)$ , c'est-à-dire avec des coordonnées cylindriques, plus adaptées à la géométrie de l'échantillon. L'espoir serait de mettre en évidence des corrélations longues portées dans la direction transverse au sens de propagation, qui donneraient la forte correction à l'ISA nécessaire pour expliquer les résultats expérimentaux (voir [l'équation \(17\)](#) de l'article de la partie [2.3](#), et la discussion qui l'accompagne). En outre, cette hypothèse de corrélation à géométrie cylindrique n'est pas complètement insensée puisque la préparation des échantillons a été faite avec ce biais géométrique (rotation et écrasement). D'un point de vue expérimental, cette structure particulière de l'échantillon serait révélée par des mesures en incidence oblique puisque, a priori, les caractéristiques du milieu effectif dépendraient alors de l'angle de propagation.

Il reste encore des expériences à faire sur l'acoustique des milieux bulleux. Une des pistes à suivre est celle de la concentration. Ce chapitre a considéré des fractions volumiques de bulles

allant jusqu'à 10% et on verra au chapitre 4 ce qu'il se passe pour des fractions volumiques supérieures à 70%. Mais les fractions intermédiaires n'ont encore jamais été étudiées. Une collaboration avec Olivier Pitois est amorcée pour créer et étudier de tels milieux bulleux concentrés.

La question de l'onde incohérente dans un milieu bulleux mérite également d'être étudiée. La "coda" observée dans l'article de la partie 2.1 (voir figure 11) prouve qu'une diffusion incohérente peut être observée. Olivier Lombard a montré qu'à des fréquences très au dessus du régime évanescent, on pouvait effectivement observer des codas bien développées dans les milieux bulleux, et ses résultats expérimentaux sont conformes au modèle standard de diffusion des ondes. Un régime plus intéressant serait à plus basses fréquences, voire à la fréquence de Minnaert des bulles, pour aller tester le modèle dans un régime de très forte diffusion. Malheureusement, la résonance des bulles n'est pas favorable à l'onde incohérente parce que, comme noté par François van der Biest dans sa thèse [39], une bulle à résonance perd plus d'énergie par dissipation que par rayonnement (voir la figure 1.8). Cela explique que l'on n'observe jamais de coda à résonance dans un milieu bulleux standard. Mais il est en principe possible de trouver un milieu hôte tel que la dissipation soit moins forte que le rayonnement à résonance. L'idée est d'utiliser un milieu suffisamment élastique pour décaler la fréquence de Minnaert des bulles, ce qui favorise le terme de rayonnement, tout en s'assurant que le dit milieu soit suffisamment peu visqueux pour limiter la dissipation. Trouver un tel milieu élastique, et le rendre bulleux, fait assurément partie des projets futurs.



## Chapitre 3

# Plan de bulles

*It is nice to know that the computer understands the problem. But I would like to understand it too.*

---

Eugene Wigner

Ce chapitre se penche sur un cas particulier de milieu bulleux : un plan unique de bulles. Les milieux bulleux de faibles épaisseurs, parfois appelés rideaux de bulles, ont souvent été abordés dans la littérature, ne serait-ce que pour une raison expérimentale évidente de facilité de mesure (la transmission à travers un milieu bulleux épais étant, on l’a déjà vu, extrêmement faible). On s’intéresse ici à une configuration particulière d’un plan unique ou, si l’on veut, au cas extrême d’un rideau de bulle d’épaisseur nulle : toutes les bulles sont dans le même plan  $z = 0$ . L’étude de cette géométrie simple a débuté à l’université du Manitoba, motivée par notre méthode d’injection dans un fluide à seuil qui rendait possible la création d’une unique couche de bulles. On s’est vite aperçu qu’en plus de rendre les mesures de transmission plus simples, le plan de bulles avait un intérêt conceptuel puisqu’il permettait de mieux comprendre les phénomènes de couplages acoustiques entre bulles, c’est-à-dire les problèmes de boucles de diffusion et de corrélations de position qui nous ont déjà occupés lors du chapitre précédent. Ce sujet fait toujours l’objet d’une collaboration étroite entre l’université du Manitoba, l’Institut Langevin et le laboratoire MSC. On présente ici 4 articles sur le plan de bulles, publiés entre 2009 et 2015, répartis en trois thèmes : les calculs de base et les premières expériences (partie 3.1), l’éclairage du plan de bulles sur la question des bandes de Bragg et d’hybridation dans un cristal phononique (partie 3.2), et la mise en évidence d’une super-absorption acoustique (partie 3.3).

### 3.1 Transmission à travers un plan de bulles [Article 4]

L’article de cette partie est paru dans *The European Physical Journal E* en 2009 [40]. La situation étudiée est schématisée sur la figure 3.1 : une onde de pression incidente, d’amplitude  $p_{\text{inc}}$ , arrive sur le plan de bulles. On considère que les bulles du plan sont organisées suivant un réseau carré de maille  $d$ . Cette situation très simple donne lieu à une diffusion multiple



très riche, dont quelques exemples de chemins sont représentés sur la figure 3.1. Plutôt que de faire le compte de toutes ces boucles, on préfère utiliser l'argument auto-cohérent suivant : puisque toutes les bulles sont équivalentes (on se place dans le cas d'une incidence normale), elles ressentent toutes le même champ total  $p_{\text{tot}}$  qui vérifie

$$p_{\text{tot}} = p_{\text{inc}} + \sum_{j \neq i} p_{\text{tot}} f \frac{e^{ik_0 r_{ij}}}{r_{ij}}, \quad (3.1)$$

où  $f$  est la fonction de diffusion des bulles et  $r_{ij}$  la distance entre la bulle  $i$  et la bulle  $j$ . On évalue ensuite la somme discrète en passant à une intégrale continue, en prenant une répartition uniforme de bulles dans le plan  $n = 1/d^2$  :

$$p_{\text{tot}}/p_{\text{inc}} = \left( 1 - \int_b^{+\infty} dr 2n\pi f e^{ik_0 r} \right)^{-1}, \quad (3.2)$$

où  $b$  est la longueur de coupure de l'intégrale, qu'il faut déterminer. Pour un milieu désordonné de diffuseurs ponctuels, on peut prendre  $b = 0$ . Notons qu'on peut ajouter au calcul une fonction de corrélation  $g(r)$  pour tenir compte d'une éventuelle structuration du plan. Avec le plan cristallin, on s'intéresse à un cas extrême de corrélation de positions puisque chaque diffuseur est au nœud d'un réseau périodique. Une astuce pour faire le calcul consiste à utiliser l'argument de "la bulle dans une boîte" décrit dans la figure 3.2. On trouve alors  $b = d/\sqrt{\pi}$ , c'est à dire que la surface à exclure de l'intégrale correspond à l'aire de la maille élémentaire du cristal.

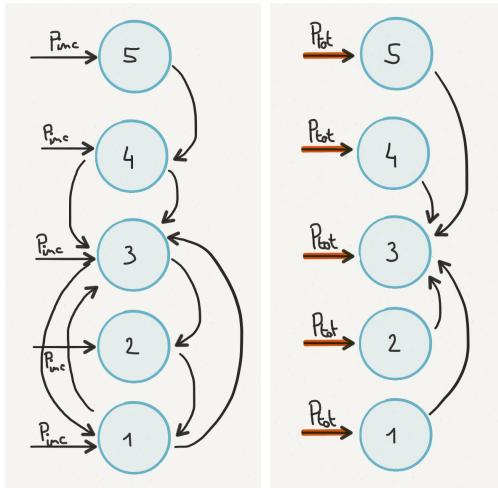


FIGURE 3.1 – **Gauche** : calculer le champ total que ressent la bulle 3 relève de l'exploit si on suit une démarche "frontale". Pour l'illustrer, on a fait apparaître ici quelques chemins de diffusion possibles, qui se traduisent mathématiquement par  $p_i f \exp(ik_0 d_{54})/d_{54} \times f \exp(ik_0 d_{43})/d_{43}$  pour celui en haut à droite, ou encore  $p_i f \exp(ik_0 d_{32})/d_{32} \times f \exp(ik_0 d_{21})/d_{21} \times f \exp(ik_0 d_{13})/d_{13}$  pour le chemin en bas à droite. Garder le compte de tous les chemins possibles n'est clairement pas facile. **Droite** : Une démarche plus astucieuse consiste à dire que chaque bulle ressent une pression totale  $p_{\text{tot}}$  qui vérifie une relation auto-cohérente.

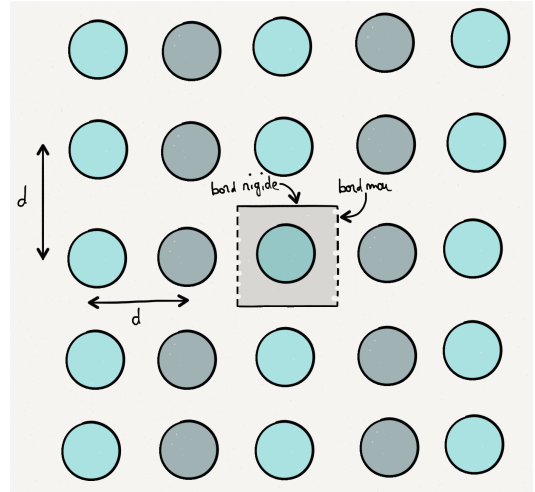
On trouve finalement qu'un plan de bulles de rayon  $R$  excité par une onde plane  $p_{\text{inc}} \exp[ik_0 z]$  génère deux ondes, en  $F p_{\text{inc}} \exp[ik_0 z]$  et en  $F p_{\text{inc}} \exp[-ik_0 z]$ , avec une fonction de réponse  $F$  donnée par

$$\begin{aligned} F &= \frac{iKf}{1 - iKf e^{ik_0 b}}, \\ &= \frac{iKR}{\left[ \frac{\omega_0^2}{\omega^2} - 1 + KR \sin(k_0 b) \right] - i[\delta + KR \cos(k_0 b)]}, \end{aligned} \quad (3.3)$$

où on a défini<sup>1</sup>  $K = 2\pi n/k_0$ , et où la seconde ligne provient du développement de la fonction de diffusion d'une bulle unique (voir l'équation (1.13)). Le plan de bulles cristallin se comporte donc aussi comme un oscillateur harmonique, avec une fonction de réponse lorentzienne, mais avec une résonance décalée vers les hautes fréquences du fait de l'ordre. Cette prédiction a été confirmée expérimentalement (voir figure 4 de l'article 4).

La partie imaginaire du dénominateur de la fonction de réponse (3.3) mérite également un commentaire. En séparant le taux d'amortissement de la bulle seule en sa partie radiative et sa partie dissipative  $\delta = k_0 R + \delta_{\text{dis}}$  et en développant le  $\cos(k_0 b)$ , on trouve que la partie radiative du taux d'amortissement de la bulle est remplacée par celle du plan, donnée par  $KR$ , qui s'interprète comme un terme de super-radiation. On aura l'occasion d'y revenir dans la partie 3.3.

FIGURE 3.2 – L'argument pour déterminer  $b$  dans l'intégrale de (3.2) provient d'une construction d'images. À partir du calcul de la réponse d'un plan de bulle, on peut étendre à une infinité de plans séparés d'une distance  $d$ . On obtient alors un cristal de bulles. Un mode particulièrement intéressant de ce cristal est celui pour lequel chaque plan est en opposition de phase par rapport au précédent ( $kd = \pi$ ). Ce mode peut se retrouver en enfermant une bulle dans une boîte cubique dont 4 faces sont parfaitement rigides (ce qui construit des images en phase) et 2 faces parfaitement molles (ce qui construit des images en opposition de phase). Or la bulle étant dans une boîte, elle ne peut pas rayonner. Donc le mode correspondant doit avoir un rayonnement nul. Cette condition est effectivement obtenue pour  $b = d/\sqrt{\pi}$  (voir équation (10b) de l'article).



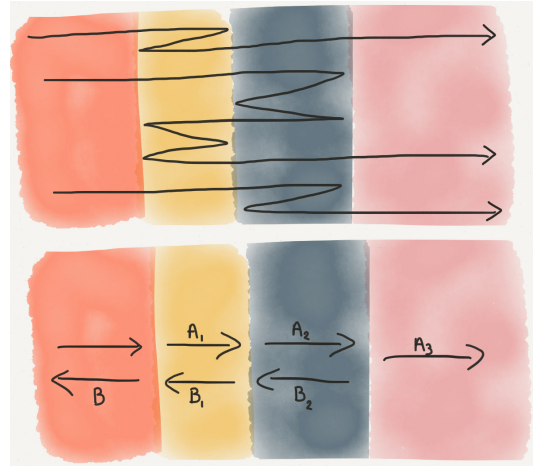
Ce calcul avec un plan de bulles apporte une lumière intéressante sur le problème de la prise en compte des boucles dans le modèle de Foldy. La démarche auto-cohérente nous a permis de tenir compte des boucles sans avoir besoin de faire une somme compliquée de tous les chemins de diffusion. Dans notre présentation simplifiée du modèle de Foldy en début de manuscrit (voir 1.2.2), nous avons suivi exactement la même démarche en cherchant un champ de pression sous la forme  $p \exp ikz$  avec une amplitude de pression  $p$  et un nombre d'onde effectif  $k$  déterminés par des relations auto-cohérentes. La figure 3.3 montre un exemple encore plus simple pour lequel une approche auto-cohérente est nécessaire. Avec cette approche, chercher le poids des boucles après coup, en utilisant un critère de WT, n'a plus vraiment de sens. Pour preuve, on pourrait définir un critère équivalent à celui de WT dans le cas du plan. Le poids

1. Attention la notation pour  $K$  est légèrement différente dans l'article. On y définit un  $K$  imaginaire (il incorpore le  $i$  dans sa définition), mais il est plus judicieux de le prendre réel.

moyen des boucles serait alors donné par  $f^2 \int_b^{+\infty} n d^3 r \exp(2ik_0 r)/r^2 = -2\pi(f/d)^2 \text{Ei}(2ik_0 b)$ , où  $\text{Ei}(x) = \int_{-x}^{+\infty} dt \exp(-t)/t$  désigne la fonction exponentielle intégrale. La fonction Ei diverge en 0, et même en prenant une limite d'intégration non nulle,  $b = d/\sqrt{\pi}$  par exemple, on obtient un critère de WT qui prend des valeurs très grandes à résonance. C'est le signe que les boucles sont importantes, mais cela ne remet pas en cause notre résultat.

On est donc tenté d'en conclure que les boucles de diffusion, souvent présentées comme un élément important manquant dans le modèle de Foldy (et, rappelons le, dans l'ISA et Waterman et Truell) sont en fait déjà incluses. En revanche, les résultats sur le plan de bulles mettent bien en lumière le rôle important des corrélations de position, qui elles ne sont effectivement pas prises en compte par Foldy.

FIGURE 3.3 – Le calcul de la transmission à travers un système multi-couches unidimensionnel est un bon exemple du danger que présente un approche par “som-mation brutale”. Le décompte des chemins de réflexion multiple est facile à faire pour 3 couches, mais inextricable dès 4. La solution consiste généralement à chercher une solution sous une forme  $A \exp(ikx) + B \exp(-ikx)$  au sein de chaque couche, avec des coefficients  $A$  et  $B$  déterminés par les conditions aux limites. Il s'agit d'une approche auto-cohérente.



# Transmission of ultrasound through a single layer of bubbles

Valentin Leroy<sup>1a</sup>, Anatoliy Strybulevych<sup>1</sup>, Martin G. Scanlon<sup>2</sup>, and John H. Page<sup>1b</sup>

<sup>1</sup> Department of Physics & Astronomy, University of Manitoba, Winnipeg, Canada

<sup>2</sup> Department of Food Science, University of Manitoba, Winnipeg, Canada

April 1, 2009

**Abstract.** We investigate, both experimentally and theoretically, the effect of coupling between resonant scatterers on the transmission coefficient of a model system of isotropic scatterers. The model system consists of a monodisperse layer of bubbles, which exhibit a strong monopole scattering resonance at low ultrasonic frequencies. The layer was a true 2D structure obtained by injecting very monodisperse bubbles (with radius  $a \sim 100 \mu\text{m}$ ) into a yield-stress polymer gel. Even for a layer with a low concentration of bubbles (areal fraction,  $n\pi a^2$ , of 10-20 %, where  $n$  is the number of bubbles per unit area), the ultrasonic transmission was found to be significantly reduced by the presence of bubbles ( $-20$  to  $-50$  dB) and showed a sharp minimum at a particular frequency. Interestingly, this frequency did not correspond to the resonance frequency of the individual, isolated bubbles, but depended markedly on the concentration. This frequency shift is an indication of strong coupling between the bubbles. We propose a simple model, based on a self-consistent relation, which takes into account the coupling between the bubbles and gives good agreement with the measured transmission coefficient.

**PACS.** 4 3.35.+d, 43.20.+g

## 1 Introduction

During the last decade, there has been increasing interest in the wave physics of complex materials, particularly in the context of exotic phenomena such as Anderson localization in strongly disordered media [1,2] or negative refraction in novel metamaterials [3]. In both cases, resonances can play a vital role, either to ensure strong scattering which is a necessary condition for localization or to manipulate the phase so as to create unusual wave propagation effects. For metamaterials, low frequency resonances, for which the wavelength is much larger than the scattering unit, are crucial [3]. For materials with acoustic resonances, bubbles are especially interesting, as they are strong acoustic scatterers that exhibit a low frequency resonance known as the Minnaert resonance [4]. As a consequence, propagation of acoustic waves is drastically affected by the presence of bubbles in a liquid and this problem has been the subject of extensive studies [5–17]. Indeed, bubbly media may be considered as acoustic metamaterials, as they exhibit exotic properties such as a very small phase velocity at low frequencies and a bandgap associated with resonances, regardless of whether the bubbles are ordered or not. In view of these rather spectac-

ular properties, and the inherent simplicity of a bubble's monopole resonance, bubbly media are often regarded as model systems for acoustic studies, which have the potential to address fundamental questions that may be relevant for the transport of any type of wave through materials where strong wave scattering plays an important role.

One of the key issues for wave transport in strongly scattering materials is the effect of coupling between scatterers near resonance, an effect that makes the traditional independent scatterers approximation (ISA) inadequate. To correctly account for the scattering from any scatterer when the concentration becomes large, the influence of the other scatterers must be included - a process called dependent or recurrent scattering. In many previous studies of wave propagation in strongly scattering media, interest in the breakdown of the ISA has focused on interference effects associated with the approach to Anderson localization. Another possible effect of dependent scattering is a shift in the resonance frequency of the scatterers. This effect can be treated theoretically via effective medium models [18], but since the effect is often rather small, it can be difficult to detect, and so is frequently overlooked. To gain a better understanding of the underlying physics, a combination of experiment and theory on a system exhibiting a large resonant frequency shift is needed. Acoustic resonances in a well controlled bubbly dispersion may be good candidates to address this manifestation of the breakdown of the ISA.

<sup>a</sup> Present address: Laboratoire Matière et Systèmes Complexes, Université Paris Diderot-Paris 7, CNRS (UMR 7057), 10 rue Alice Domon et Léonie Duquet, 75205 Paris, France; e-mail: valentin.leroy@univ-paris-diderot.fr

<sup>b</sup> e-mail: jhpage@cc.umanitoba.ca

While different corrections to the ISA have been proposed for bubbly media, no clear consensus exists about which one is correct [13–16, 19–22] and experimental data are lacking. Indeed, on the one hand, experiments with a finite number of bubbles are relatively numerous and clearly demonstrate that the coupling between bubbles plays an important role [23–26]. On the other hand, experiments with a *continuum* of bubbles are often limited to frequencies below or above the resonance [27–30] and seldom investigate the resonance [5, 7, 31]. This lack of data can be explained by the huge attenuation of sound in bubbly media around the resonance frequency, which makes precise measurements a difficult task. Consequently, how the coupling between bubbles should be taken into account to correct the ISA formulation is still an open question.

An alternative approach to the ISA and its possible corrections is the Multiple Scattering Theory (MST) [6, 32–34], which provides a systematic and accurate way to take into account the coupling between the scatterers. However, its exact implementation is limited to perfectly *ordered* systems, or to a finite number of *disordered* scatterers. This limitation to a finite number of scatterers in the disordered case is particularly critical when the scatterers are bubbles. Since the frequencies of interest correspond to large wavelengths compared to the typical distance between bubbles, a large number of scatterers is required in the finite system to give information that is relevant to macroscopic samples.

In this paper, we investigate the effect of dependent scattering on the resonant frequency of an ensemble of bubbles by reporting measurements of the acoustic transmission through *one* layer of identical bubbles. A layer of bubbles presents the double advantage of being thin, so that the transmission of sound remains measurable, and of being a geometry simple enough to make analytical calculations possible. Note that we use the term layer to refer to an assembly of bubbles located on the same plane, *i.e.* a 2D structure. This case differs from the thin layer of bubbles sometimes investigated in the literature [11, 35] which refers to a thin 3D structure. To our knowledge, the problem of the acoustic properties of one plane of bubbles has never been studied experimentally. We interpret our experimental observations by developing a theoretical model that accounts for the interaction between bubbles, thereby extending previous calculations for a plane of isotropic scatterers [36, 37] and giving a simple physical picture of the origin of the resonance shift. We find that the large shifts in the resonant frequency that we measure experimentally at low concentrations of bubbles are well explained by our model.

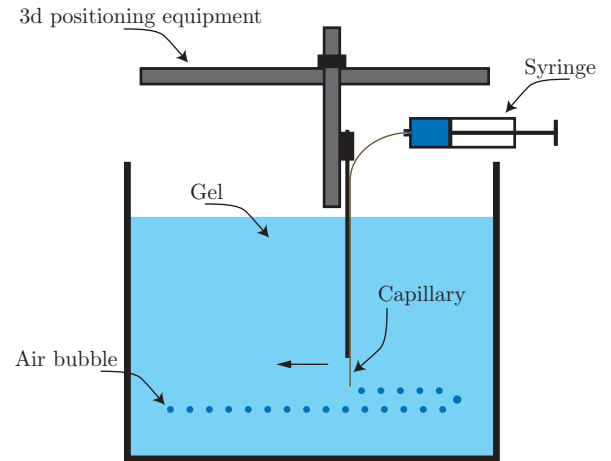
## 2 Experimental set-up

### 2.1 Sample preparation

The production of 2D samples of identical bubbles was obtained with a home-made set-up [31], whose key innovation was the use of a yield-stress polymer fluid as a

matrix for the injection of the bubbles. We used a commercial hair gel (Dep, sport endurance gel, made in USA by Henkel corporation) diluted with water and degassed. The benefit of the hair gel for this experiment is that it flows only if the applied stress is larger than a threshold value (the yield stress). Hence if bubbles are sufficiently small, they remain trapped in the gel at the exact place where they have been injected.

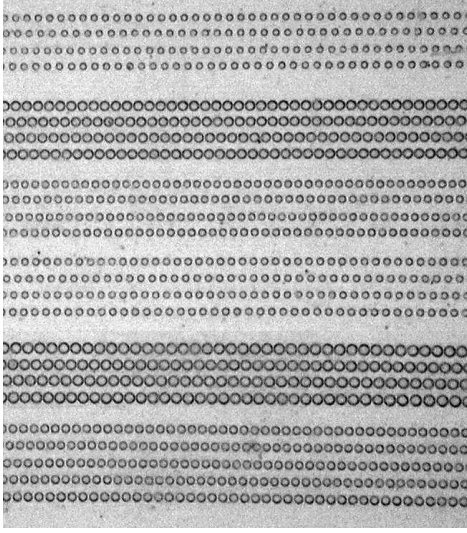
The injection was performed as depicted in Fig. 1. A thin capillary (inner diameter of  $20\ \mu\text{m}$ ), connected to a syringe with air at pressure  $P$ , was moved at constant speed  $V$  in the gel. With a well-controlled flow of gas through the capillary, as set by the pressure  $P$ , the movement generated an array of equally spaced bubbles of the same size. Thanks to a 3D displacement stage, the vertical distance between successive rows of bubbles could be pre-programmed, depending on the desired total concentration.



**Fig. 1.** Injection of bubbles: a capillary is moved in a pre-programmed pattern of positions within the gel, delivering rows of equally sized bubbles. The speed  $V$  at which the capillary was moved and the pressure  $P$  in the syringe are the two parameters governing the bubble size and the distance between bubbles.

Although a discussion of the exact mechanisms involved in this process is outside the scope of this article, we note that by varying the two parameters  $P$  and  $V$ , different bubble radii  $a$  and distances between bubbles  $d$  could be obtained. Examples of injections with different speeds and pressures are given in Fig. 2. Typically, small bubbles separated by large distances were obtained with low pressures and high speeds ( $a = 80\ \mu\text{m}$  and  $d = 1060\ \mu\text{m}$  for  $P = 1.33\ \text{bar}$  and  $V = 1\ \text{cm/s}$ ), whereas high pressures and low speeds generated big bubbles almost in contact ( $a = 170\ \mu\text{m}$  and  $d = 355\ \mu\text{m}$  for  $P = 2\ \text{bar}$  and  $V = 0.2\ \text{cm/s}$ ). All the configurations between those two extreme cases were possible by a fine tuning of  $P$  and  $V$ . Therefore, the device made possible the injection of quasi-ordered monodisperse layers of bubbles, with a good control of the size and the concentration. However, the bubbles were never arranged in a perfect crystal, because it

was impossible to achieve a good “synchronization” from one line to the other. As a result, there was an offset in the position of the bubbles, as is apparent in Fig. 2, for instance. The edges of the bubble array were even more imperfect: since the motor stage needed to decelerate before turning to the next line, bubbles on the edges tended to be significantly bigger than the ones in the middle of the sample.



**Fig. 2.** Examples of bubble arrays obtained with the injection apparatus shown in Fig. 1, under six different conditions. The three top series of four lines were injected with  $P = 1.8$  bar, and  $V = 1, 0.2, 0.5$  cm/s from top to bottom. The three bottom series of lines were injected with  $P = 2$  bar, and the same sequence of speeds.

An important issue was the stability of the sample: if the degassed gel was under-saturated with air, bubbles dissolved in a matter of minutes. To prevent this, an interval of several days was required between the degassing of the gel and the injection, so that the gel was saturated. With this precaution, samples were stable over several hours, and it was checked that the size of the bubbles was not changing during the course of the ultrasonic measurements.

## 2.2 Ultrasonic measurements

Samples were injected with bubbles in a 1.2-cm-thick cell that was filled with the gel. The walls of the cell were made from a very thin sheet of plastic (0.1 mm). From the acoustic point of view, the gel was very similar to water and the walls were transparent, at least for the frequencies considered in these experiments ( $\sim 100$  kHz). Thus, when no bubbles were present, we can consider the cell to be equivalent to a slab of water. This equivalence was checked experimentally by measuring both the longitudinal and shear moduli of the gel. The longitudinal modulus, as determined from the longitudinal ultrasonic velocity  $v$ , was

found to be identical to water ( $\beta' = 2.3$  GPa, with  $\beta''$  too small to measure at these frequencies). The complex shear modulus of the gel was also measured, using standard rheological techniques, at frequencies up to 100 Hz: the results are  $\mu' = 60 \text{ Pa} \times \left(\frac{\omega}{2\pi \text{ Hz}}\right)^{0.1}$  and  $\mu'' = 13 \text{ Pa} \times \left(\frac{\omega}{2\pi \text{ Hz}}\right)^{0.5}$ . Thus, by any plausible extrapolation of the shear modulus data to ultrasonic frequencies, the shear modulus is so much smaller than the longitudinal modulus that its effects on the acoustic properties of the gel are likely to be negligible. The shear modulus is also much smaller than the longitudinal modulus of the air ( $\beta'_{\text{air}} = 0.14$  MPa) and thus does not affect the dynamics of the bubbles. This was checked by measuring the resonance frequency of single bubbles of different radii in the gel, using the same method as in ref [38]. These measurements showed that the Minnaert formula, derived for bubbles in a liquid, is also valid in the gel.

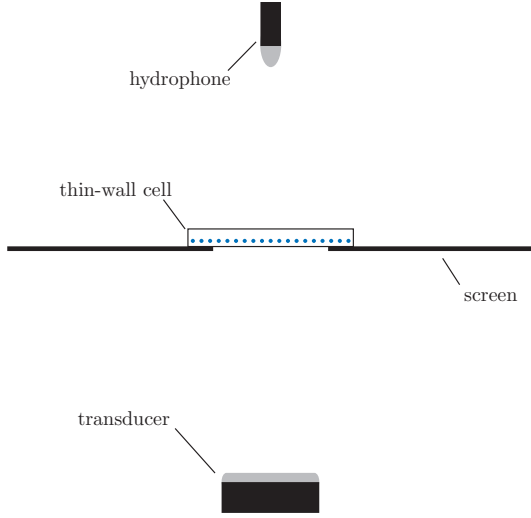
The acoustic properties of the samples were measured with the set-up of Fig. 3. In a large tank ( $60 \times 60 \times 120 \text{ cm}^3$ ) filled with reverse osmosis water, a piezoelectric transducer generated a pulse that propagated through water, traversed the sample and reached the hydrophone. The amplitude of the acoustic signal was small enough ( $\sim 10^3$  Pa) to prevent non-linear response of the bubbles. Because the transmission through the layer of bubbles was low, and because the divergence of the beam was not negligible (especially at low frequencies), the use of a screen (a plastic ring wrapped with Teflon tape) was essential for reducing spurious signals. The aperture,  $D$ , of the screen was larger than the wavelength of the pulse to limit diffraction effects, but smaller than the typical size on which the layer of bubbles could be considered to be uniform (*i.e.* the bad edges of the injected area were excluded from the measurement). In our experiments,  $D$  was 6 cm, the lines of bubbles were 8 cm long, and the maximum wavelength was 5 cm (for the lowest frequency of 30 kHz).

Gaussian pulses, with central frequencies ranging from 30 to 250 kHz, were generated by an arbitrary waveform generator connected to a piezoelectric transducer. The pulses were recorded, with a hydrophone, in two different cases: when the cell was mounted on the screen, and when the cell was absent. The signals were averaged over 100 acquisitions when the attenuation was low (for reference measurements, for example), and up to 5000 acquisitions for highly attenuated signals. The transmission coefficient through the layer of bubbles,  $T$ , was obtained by calculating the ratio of the Fourier transforms of the signals with and without the cell in the path of the acoustic beam. Such a method, *a priori*, gives the contribution to the transmission not only of the bubbles but also of the gel and the walls of the cell. However, it was verified that the cell filled with a bubble-free gel has a transmission coefficient of 1, justifying the suitability of our methodology for measuring the contribution of the bubbles only.

## 3 Results and Discussion

Figure 4 shows the magnitude of the transmission measured through one layer of  $94\text{-}\mu\text{m}$ -radius bubbles sepa-





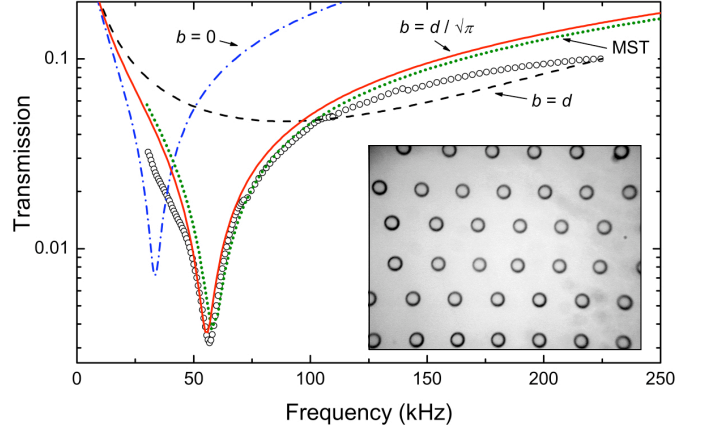
**Fig. 3.** Sketch of the set-up for ultrasonic measurements. A piezoelectric transducer emits an acoustic pulse that traverses the cell containing the layer of bubbles and is detected by a hydrophone.

rated by  $530 \mu\text{m}$ . The first observation is that even a small fraction of bubbles (here the areal fraction is 10 %) can efficiently block the propagation of low frequency ultrasound. The presence of the layer reduces the amplitude of the sound by more than a factor 10 throughout the 100–250 kHz frequency band. The transmission can even be much lower and reaches a minimum of  $3 \times 10^{-3}$  at 56 kHz. Interestingly, this frequency is 70 % higher than the resonance frequency of the individual bubbles of the layer ( $\sim 33 \text{ kHz}$ ). This is a clear evidence of the strong coupling between bubbles. Note that the shift of the resonance frequency to a *higher* frequency may seem surprising. Indeed, as the bubbles of the plane are driven in phase by the incoming plane wave, we could expect a *lowering* of the resonance frequency, as usually observed for a system of oscillators in phase.

A *single* isotropic scatterer excited by an incoming monochromatic plane wave  $p_e \exp(ikx - i\omega t)$  generates a spherical field  $(fp_e/r) \exp(ikr - i\omega t)$ , where  $f$  is the scattering function of the scatterer. For a bubble of radius  $a$ ,  $f$  is given by:

$$f = \frac{a}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - 1 - i\delta}, \quad (1)$$

where  $\omega_0$  is the Minnaert resonance of the bubble and  $\delta$  its damping constant [4, 39, 40]. The bubbles' oscillations are damped by three mechanisms: viscosity, thermal losses and radiation. For the sake of simplicity, we will focus for now on the radiative damping and take  $\delta = ka$ ; in the comparison of theory with experiment later on, we include all contributions to  $\delta$ . Note that all our results in this article are valid for frequencies low enough to ensure that  $ka \ll 1$  (*i.e.* the bubble's radius is much smaller than the wavelength). For bubbles, this condition is not at all restrictive because the Minnaert resonance is a very low frequency resonance:  $\omega_0 a/v \sim 10^{-2}$ .



**Fig. 4.** Magnitude of the amplitude transmission coefficient through one layer of  $94 \mu\text{m}$ -radius bubbles separated on average by  $530 \mu\text{m}$  (see inset) as a function of frequency. Open circles: experimental data. Solid, dashed and dash-dotted lines: model with three possible cutoffs,  $b = d/\sqrt{\pi}$ ,  $b = d$  and  $b = 0$ , respectively (see text). Dotted line: MST prediction.

A *plane* of isotropic scatterers excited by a monochromatic plane wave  $p_e \exp(ikx - i\omega t)$  generates a plane wave with amplitude  $2i\pi n p_e/k$  [41], where  $n$  is the number of scatterers per unit area. Thus the layer of scatterers gives rise to a transmitted plane wave  $T p_e \exp(ikx - i\omega t)$  and a reflected plane wave  $R p_e \exp(-ikx - i\omega t)$  with

$$T = 1 + Kf \quad (2)$$

$$R = Kf, \quad (3)$$

where  $K = 2i\pi n/k$ . Richard Feynman used these relations in his famous lectures [42] to introduce the physical principle of the optical index of a medium. If we consider that the plane of scatterers is a thin layer of homogeneous material with a thickness given by  $d = 1/\sqrt{n}$ , the phase difference induced by traversing the layer can be attributed to an effective wave number  $\kappa = k + 2\pi f/(kd^3)$ , which is nothing else but the expansion of the classical Foldy law:  $\kappa^2 = k^2 + 4\pi N f$  [43], where  $N$  is the number of scatterers per unit volume.

The previous calculation assumed that the scatterers were independent. In our case, we know that the presence of other bubbles around one bubble drastically modifies its scattering properties. Bubbles are usually strongly coupled to each other and the scattering function  $f$  should be replaced by a new function  $F$  accounting for the interactions between the bubbles:  $F p_e = f p_{\text{tot}}$ , where  $p_{\text{tot}}$  is the total field at each scatterer. In the general case, calculating  $F$  is a difficult task [13, 15]. But for the simple geometry of the plane, a considerable simplification occurs: all the bubbles are experiencing the same average field. Therefore we can consider, without loss of generality, the bubble located at the origin of our system of coordinates, which experiences a total pressure  $p_{\text{tot}} = p_e(1 + \tilde{K}F)$ , where  $\tilde{K}$  is defined by

$$\tilde{K} = \sum_n \frac{1}{r_n} e^{ikr_n}, \quad (4)$$



the summation being over all the *other* bubbles of the plane and  $r_n$  denoting the distance of bubble  $n$ . By the definitions of  $F$  and  $f$ , one then obtains the self-consistent relation  $F = f(1 + \tilde{K}F)$  which leads to

$$F = \frac{f}{1 - \tilde{K}f} \quad (5a)$$

$$= \frac{a}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - 1 - i\delta - \tilde{K}a}. \quad (5b)$$

The last step to obtain a complete expression for the transmission through a plane of bubbles is the evaluation of  $\tilde{K}$ . The approximation of a continuous distribution of scatterers on the plane allows us to use an integral expression:

$$\tilde{K} \simeq \int_b^\infty 2\pi n e^{ikr} dr = K e^{ikb}, \quad (6)$$

where  $b$  is a cutoff distance below which no other bubbles are supposed to be found. With this notation the transmission coefficient  $T = 1 + KF$  becomes:

$$T = 1 + \frac{Kf}{1 - Kf e^{ikb}}. \quad (7)$$

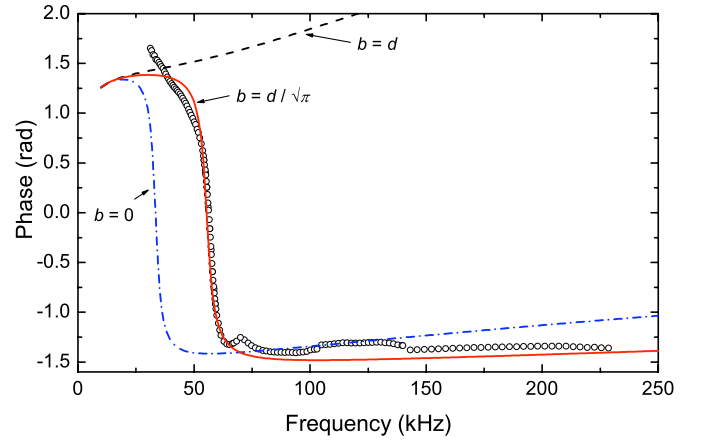
The exact choice for  $b$  is not a trivial question. A natural choice can be to consider that  $b = d$  because  $d$  is the distance between two successive bubbles. Another choice is  $b = 0$ , which is equivalent to neglecting any correlations in the positions of the scatterers (a gas of point-like scatterers), and interestingly leads to the same result as Foldy's prediction for an infinitely thin layer of bubbly liquid<sup>1</sup>. But it appears that realistic results are obtained when taking for  $b$  the distance needed to define a unit cell containing the proper areal fraction of scatterers, which is  $b = d/\sqrt{\pi}$ . A formal justification is possible for an ordered plane of bubbles, as will be discussed below. With this choice for  $b$ , it is interesting to note that, providing that  $kb \ll 1$ , the effective total damping term in equation (5b) has a very clear interpretation. Indeed, it can be written as  $\delta + \text{Im}(\tilde{K}a) \simeq 2\pi\delta/(dk)^2 = \delta\lambda^2/(2\pi d^2)$  (where  $\lambda$  is the wavelength), which has the form of a *super-radiative* term, due to many bubbles radiating coherently. Thus the radiative damping of a single bubble is enhanced by the factor  $\lambda^2/(2\pi d^2)$ , which corresponds to the number of bubbles in the area  $\lambda^2/2\pi$ . As the wavelength we consider here is large, the plane does not need to have a very high concentration of bubbles for  $(\lambda/d)^2$  to be large, implying that  $F$  is very different from  $f$ . Another consequence of the interactions between the bubbles in the plane is a shift of the resonance frequency of the system. The maximum of amplitude of  $F$  is not reached for the individual resonance of the bubbles but for a higher frequency

$$\omega_{\text{res}} = \frac{\omega_0}{\sqrt{1 - 2\sqrt{\pi}(a/d)}}. \quad (8)$$

In figure 4, the amplitudes of the transmission  $T$  predicted by the three different choices for  $b$  are plotted in the case

<sup>1</sup> See for example results in Ref. [35] when thickness  $h$  tends to 0, for isotropic scatterers.

of our plane of bubbles. For  $b = 0$  the minimum of transmission occurs at the Minnaert resonance of the individual bubbles, which disagrees with the experimental data. For  $b = d$ , agreement is also poor. On the other hand,  $b = d/\sqrt{\pi}$  leads to excellent agreement: both the position and the depth of the dip in transmission (due to the resonance) are precisely predicted. Note that thermal and viscous losses were included in the calculations; neglecting them leads to a lower transmission at the resonance. Using the same parameters, the model also reproduces very precisely the observed sharp jump in the phase of the transmission coefficient at the resonance frequency (Fig. 5).



**Fig. 5.** Measured phase of the transmission coefficient through the same sample as in figure 4 (open circles). A wave propagating through the layer experiences a phase shift of about +1.5 rad or -1.5 rad for frequencies lower or larger than the resonance frequency, respectively. At the resonance, there is a sharp jump of  $\pi$  in the phase. Theoretical results for the three cutoffs considered in the model are also shown by the solid, dashed and dash-dotted lines.

A justification for the choice of the cutoff  $b = d/\sqrt{\pi}$  can be found by considering the case of an infinite number of layers of bubbles. Let us assume that identical layers are at  $x_n = nd$ , with  $n \geq 0$ . By calculating the total pressure field experienced by each bubble of plane  $n$ , we can write that the scattering function  $F_n$  of layer  $n$  is

$$F_n/f = 1 + \tilde{K}F_n + \sum_{j=0}^{n-1} KF_j + \sum_{j=n+1}^{\infty} KF_j e^{i2k(j-n)d}. \quad (9)$$

If we look for a solution of the form  $F_n = F e^{i n(\kappa - k)d}$ , two conditions are needed to satisfy Eq. (9):

$$KF = e^{i(\kappa - k)d} - 1, \quad (10a)$$

$$\begin{aligned} \cos(\kappa d) &= \cos(kd) + i \frac{Kf \sin(kd)}{1 - Kf(e^{ikb} - 1)} \\ &= \cos(kd) \\ &\quad - \frac{\frac{2\pi a}{kd^2} \sin(kd)}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - 1 - i\delta - i\frac{2\pi a}{kd^2}(e^{ikb} - 1)}. \end{aligned} \quad (10b)$$

Equation (10a) gives the amplitude of the sound wave transmitted through the bubbly medium, and Eq. (10b) is the dispersion relation<sup>2</sup>. This result is connected to another system that gives additional insight into the problem of determining the cutoff  $b$ . Indeed, if we consider one bubble in a box, having four side walls that are completely rigid and front and rear walls that are completely free to move, the method of images tells us that this problem is equivalent to an infinite number of ordered planes of bubbles, every bubble of each plane being in phase, and every successive plane being out of phase. Consequently, the modes of the system are found by taking  $\kappa d = \pi$  in Eq. (10b). The point of this analogy is that the bubble in the box is a totally closed system, which means that no radiative losses can occur. Thus, the damping in (10b) must also vanish, leading to the condition on  $b$  given by  $\cos(kb) = 1 - k^2/(2\pi n)$ . This gives a formal justification for our choice of the cutoff  $b = d/\sqrt{\pi}$ <sup>3</sup>. Note that this demonstration is only valid for perfectly ordered layers but should nonetheless be a good approximation for our partially ordered system (Fig. 4 inset).

Because of this almost ordered state of the sample, it is also appropriate to compare our experimental data with the predictions of multiple scattering theory. MST is known to give accurate results for ordered arrays of scatterers that have simple shapes, such as solid spheres or rods, where the scattering can be calculated exactly. However, for bubbles, an important modification must be made to traditional MST, as there are additional damping mechanisms (the viscous and thermal losses mentioned above) that must be included to give accurate results. To perform these calculations, we used the program MULTTEL [44], in which the viscous and thermal losses were incorporated by replacing the sound speed in air by an effective complex sound speed that mimics the effects of these damping mechanisms. The procedure was the following: (1) The Minnaert angular frequency  $\omega_0$  and the thermal and viscous damping constant  $\delta$  were calculated for the bubbles

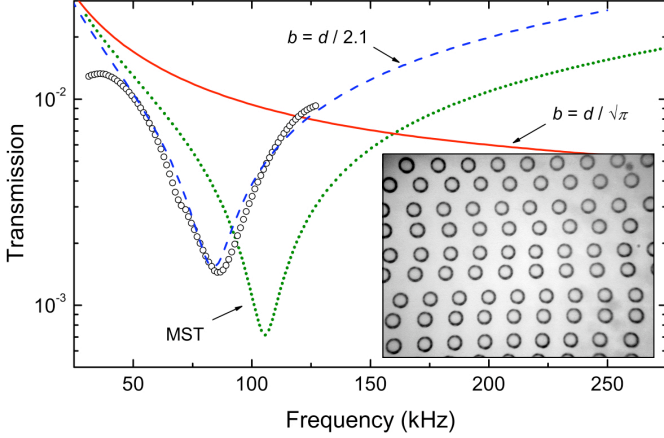
<sup>2</sup> In the limit of large wavelengths, *i.e.* when  $kd, \kappa d \ll 1$ ,  $\kappa$  may be interpreted as the effective wave number in the bubbly medium. The choice  $b = 0$  for the cutoff leads again to Foldy's formula.

<sup>3</sup> Strictly speaking, the condition brought by the ‘‘bubble in the box’’ argument concerns only the imaginary part of  $\tilde{K}$ . However, numerical calculations with Eq. (4) reveal that the real part of  $\tilde{K}$  is also well approximated by Eq. (6) with  $b = d/\sqrt{\pi}$ , when  $kd \ll 1$ . Note that in Ref. [37], Tolstoy and Tolstoy use a mathematical subterfuge to calculate the imaginary part of  $\tilde{K}$ , in perfect agreement with our result.

of our sample (see, for instance, ref [26] for detailed equations). (2) The usual dissipation-free resonance frequency of a bubble was written in terms of the velocity of sound in air,  $v_a$ , as  $\omega_{df} = \sqrt{(3\rho_a v_a^2)/(a^2 \rho_l)}$ , where  $\rho_a$  and  $\rho_l$  are the mass density of the air and the liquid, respectively [40]. (3) The effective complex velocity  $v_a^*$  was then determined by the condition that  $(3\rho_a v_a^{*2})/(a^2 \rho_l)$  equals  $\omega_0^2 - i\omega^2 \delta$  (*c.f.*, Eq. (1)). Because the distributed version of MULTTEL only allows constant parameters, we calculated  $v_a^*$  for the central frequency of our bandwidth (100 kHz). However, the frequency dependence was weak enough for this limitation not to yield major errors. This procedure was used to calculate the transmission through a single plane of bubbles arranged in a square array, giving the results shown in Fig. 4, which are very close to our approximate theory for this concentration of bubbles.

Agreement between the experimental data and the theory was satisfactory for all the layers of bubbles we investigated, as long as the concentration of bubbles was low enough. However, Eq. (8) predicts a qualitative change in the behavior of the plane of bubbles if  $d/a < 2\sqrt{\pi} \simeq 3.55$ , because  $\omega_{res}$  becomes imaginary (see Eq. 8). In order to investigate this prediction, we measured the transmission through a concentrated layer of bubbles for which  $d/a = 3.5$  (it corresponds to an area fraction of 26 %). As shown in figure 6, our approximate model (solid black line) does not predict any dip. Experimentally, the measured transmission through this layer with a higher concentration of bubbles is very similar to the previous one, the difference being that the average transmission is lower and the position of the dip is shifted to higher frequency (86 kHz, whereas the Minnaert resonance of the bubbles is 31 kHz). In fact, our approximate model needs to be extended to take into account the short-range interactions between the bubbles. These interactions have already been described by Strasberg [45] for the simple case of a pair of closely-spaced bubbles, using an analogy with the electrostatic interaction between two spherical capacitors. When the two capacitors are close together, the surface charge distribution on each capacitor is no longer spherically symmetric. By analogy, when two bubbles are close together, the oscillation of each bubble is no longer isotropic. This effect results in a small correction when there are only two bubbles, and it has not yet been observed experimentally. In our case, the effect is much larger since many bubbles are involved, and is expected to lead to a significant anisotropy in the bubble oscillations and hence in the radiative acoustic field. Qualitatively, it is easy to see that the out-of-plane displacements will be larger than the constrained in-plane displacements. However, a quantitative calculation of the resulting resonance properties becomes very technical and one loses the benefit of a simple, physically transparent, theory. The multiple scattering approach is then more appropriate. We therefore performed the calculation of the transmission with MULTTEL in the case of this higher concentration sample. As shown in figure 6, the program predicts a dip in transmission, contrary to the approximate theory, but its position and depth do not match the experimental observations. A

possible explanation of this discrepancy may come from the imperfect ordering of the sample (see Fig. 6 inset). Fig. 6 also shows that, for the approximate theory, it is possible to find a cutoff  $b$  that gives a reasonable agreement with the measurements.



**Fig. 6.** Magnitude of the amplitude transmission coefficient through one layer of  $100\ \mu\text{m}$ -radius bubbles separated by  $350\ \mu\text{m}$  (see inset) as a function of frequency. Open circles: experimental data. Solid and dashed lines: model with the cutoffs,  $b = d/\sqrt{\pi}$  and  $b = d/2.1$  respectively (see text). Dotted line: MST prediction.

It is instructive to examine the physical reasons for the observed *increase* of the resonance frequency. As already mentioned (see section 1), a decrease of the resonance frequency due to the bubble-bubble interactions has been observed for clouds of bubbles [23, 26, 27]. Indeed, when two bubbles are close to each other, the net effect of their interaction is a decrease in their resonance frequency, because each bubble experiences a pressure field generated by the neighbouring bubble that is in phase with its own pressure field. This can be justified by considering Eq. (5b) in the special case of two interacting bubbles. Then  $\tilde{K}$  reduces to  $e^{ikd}/d$ , where  $d$  is the distance between the bubbles, and the resonance occurs for  $\omega = \omega_0/\sqrt{1 + (a/d)\cos(kd)}$ , which is indeed lower than  $\omega_0$  for  $kd < \pi/2$ . However, if the two bubbles are further from each other, the phase between the two pressure fields can change. For example, two bubbles that are  $\lambda/2$  apart ( $kd = \pi$ ) will generate fields in anti-phase, leading to an increase of the resonance frequency. If the cloud of bubbles is smaller than half a wavelength, all the contributions are in phase, and the resonance frequency decreases. This situation corresponds to the cases investigated so far in the literature. But for an *infinite* plane of bubbles, both in phase and out of phase contributions exist: bubbles in the first disk of radius  $\lambda/4$  contribute to the decrease of the resonance frequency, whereas bubbles in the next ring of thickness  $\lambda/2$  tend to increase the resonance frequency. Thus, each successive ring of bubbles brings an opposite contribution. For the particular case of a  $2D$  sample, the contribution of each ring has exactly the same magnitude, because the

$1/r$  range of the interaction is exactly compensated by the number of scatterers in each ring. So the net effect is expected to be exactly zero, *i.e.* no frequency shift. Indeed, that is what one obtains with the choice of cutoff  $b = 0$ . But when the cutoff is not zero, the contribution of the first ring of bubbles is reduced, and the balance of the contributions causes an increase of the resonance frequency, as observed experimentally.

It is interesting to consider the extent to which correlations in the positions of the bubbles may be important for causing the large shifts in the resonances that we observe. It is sometimes assumed that, when the wavelength of the ultrasonic wave is large compared with the distance between the scatterers, the exact positions of the scatterers do not matter [46]. Indeed, our samples were quasi-ordered, and the formal justification of our model is built on an argument for an ordered array. It would also be interesting to check whether the transmission through a totally disordered layer of bubbles is different from a quasi-ordered one. However, with the device we used to inject the bubbles, obtaining a truly disordered layer is challenging, because the radius of the injected bubbles and the distance between them are closely linked (changing the pressure in the syringe or the speed of the capillary affects both  $a$  and  $d$ ). Thus, we have not been able to answer this question experimentally, but one can predict on the basis of our model that the appropriate cutoff  $b$  in Eq. (6), which can be taken to be a measure of the correlations, will be different for a random distribution. Indeed for the extreme case of a gas of point-like scatterers, it seems reasonable to take  $b = 0$ , which would eliminate the shift entirely. For finite-sized scatterers with radius  $a$ , a more plausible cutoff for a random distribution of scatterers would be  $2a$ . For bubbles, where  $a \ll \lambda$ , the result will still be close to the point-scatterer limit and quite different to the ordered case. In general, the exclusion volume around each scatterer will depend on how the samples are made, and larger frequency shifts may be observed because of the resulting position correlations. Thus, it would appear that one should be careful about the neglect of positional correlations in the long wavelength limit when there are low frequency resonances, and the measured shift in resonance frequency of an ensemble of scatterers may be quite sensitive to such correlations.

## 4 Conclusions

In this article, we showed that a  $2D$  monodisperse layer of  $\sim 100\ \mu\text{m}$  bubbles efficiently blocks transmitted ultrasound at low frequencies between 30 and 250 kHz. For an area fraction of only 10 – 20 %, the reduction in transmission ranges from –20 to –50 dB. This is a surprisingly dramatic manifestation of the strong effect of bubbles on ultrasound propagation.

Furthermore, the relatively simple geometry of a single layer of bubbles has enabled us to study the effects of bubble-bubble interactions on their resonances in considerable detail. The transmission through the bubbly layers clearly showed a minimum at a frequency that was much

higher than the individual Minnaert frequency of the bubbles, giving a dramatic demonstration of the shift in resonance frequency that can result from the coupling between the bubbles. For a bubble concentration of 10 %, the resonance frequency is increased by a factor of 1.7, while for a concentration of 26 %, the increase is even larger - a factor of 2.8. To account for this increase quantitatively, we used a self-consistent model, which predicts the resonance of the layer with very good accuracy (for concentration below 15 %) and allows the origin of the effect to be understood in a relatively simple way. Similar effects may be expected in other systems with low frequency resonances, which are a common feature of most metamaterials.

Support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada is gratefully acknowledged. We also thank M. Devaud, T. Hocquet and A. Tourin for many fruitful discussions.

## References

- Schwartz, T., Bartal, G., Fishman, S. & Segev, M. Transport and Anderson localization in disordered two-dimensional photonic lattices. *Nature* **446**, 52–55 (2007).
- Hu, H., Strybulevych, A., Page, J. H., Skipetrov, S. E. & van Tiggelen, B. A. Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network. *Nature Physics* **4**, 945–948 (2008).
- Smith, D. R., Pendry, J. B. & Wiltshire, M. C. K. Metamaterials and negative refractive index. *Science* **305**, 788–792 (2004).
- Minnaert, M. Air-bubbles and sounds of running water. *Phil. Mag.* **16**, 235–248 (1933).
- Cheyne, S. A., Stebbings, C. T. & Roy, R. A. Phase velocity measurements in bubbly water liquids using a fiber optic laser interferometer. *J. Acoust. Soc. Am.* **97**, 1621–1624 (1995).
- Kafesaki, M., Penciu, R. S. & Economou, E. N. Air bubbles in water : a strongly multiple scattering medium for acoustic waves. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 6050–6053 (2000).
- Wilson, P. S., Roy, R. A. & Carey, W. M. Phase speed and attenuation in bubbly liquids inferred from impedance measurements near individual bubble resonance frequency. *J. Acoust. Soc. Am.* **117**, 1895–1910 (2005).
- Carstensen, E. L. & Foldy, L. L. Propagation of sound through a liquid containing bubbles. *J. Acoust. Soc. Am.* **19**, 481–501 (1947).
- Silberman, E. Sound velocity and attenuation in bubbly mixtures measured in standing wave tubes. *J. Acoust. Soc. Am.* **29**, 925–933 (1957).
- Cafish, R. E., Miksis, M. J., Papanicolaou, G. C. & Ting, T. Effective equations for wave propagating in bubbly liquids. *J. Fluid Mech.* **153**, 259–273 (1985).
- Miksis, M. J. & Ting, L. Effects of bubbly layers on wave propagation. *J. Acoust. Soc. Am.* **86**, 2349–2358 (1989).
- Commander, K. W. & Prosperetti, A. Linear pressure waves in bubbly liquids: Comparison between theory and experiments. *J. Acoust. Soc. Am.* **85**, 732–746 (1989).
- Ye, Z. & Ding, L. Acoustic dispersion and attenuation relations in bubbly mixture. *J. Acoust. Soc. Am.* **98**, 1629–1636 (1995).
- Feuillade, C. The attenuation and dispersion of sound in water containing multiply interacting bubbles. *J. Acoust. Soc. Am.* **99**, 3412–3430 (1996).
- Henry, F. S. Corrections to Foldy's effective medium theory for propagation in bubble clouds and other collections of very small scatterers. *J. Acoust. Soc. Am.* **105**, 2149–2154 (1999).
- Kargl, S. G. Effective medium approach to linear acoustics in bubbly liquids. *J. Acoust. Soc. Am.* **111**, 168–173 (2002).
- Strybulevych, A., Leroy, V., Scanlon, M. G. & Page, J. H. Characterizing a model food gel containing bubbles and solid inclusions using ultrasound. *Soft Matter* **3**, 1388–1394 (2007).
- Sheng, P. *Introduction to Wave Scattering, Localization, and Mesoscopic Phenomena* (Academic Press, 1995).
- Ye, Z. Comments on the attenuation and dispersion of sound in water containing multiply interacting air bubbles. *J. Acoust. Soc. Am.* **102**, 1239–1241 (1997).
- Feuillade, C. Response to comments on the attenuation and dispersion of sound in water containing multiply interacting air bubbles. *J. Acoust. Soc. Am.* **102**, 1242–1245 (1997).
- Henry, F. S. Reply to comment on corrections to Foldy's effective medium theory for propagation in bubble clouds and other collections of very small scatterers. *J. Acoust. Soc. Am.* **111**, 1556–1559 (2002).
- Feuillade, C. Comment on corrections to Foldy's effective medium theory for propagation in bubble clouds and other collections of very small scatterers. *J. Acoust. Soc. Am.* **111**, 1552–1555 (2002).
- Hsiao, P.-Y., Devaud, M. & Bacri, J.-C. Acoustic coupling between air bubbles in water. *Eur. Phys. J. E* **4**, 5–10 (2001).
- Manasseh, R., Nikolovska, A., Ooi, A. & Yoshida, S. Anisotropy in the sound field generated by a bubble chain. *Journal of Sound and Vibration* **278**, 807–823 (2004).
- Payne, E. M. B., Illesinghe, S. J., Ooi, A. & Manasseh, R. Symmetric mode resonance of bubbles attached to a rigid boundary. *J. Acoust. Soc. Am.* **118**, 2841–2849 (2005).
- Leroy, V., Devaud, M., Hocquet, T. & Bacri, J.-C. The bubble cloud as an N-degree of freedom harmonic oscillator. *Eur. Phys. J. E* **17**, 189–198 (2005).
- Yoon, S. W., Crum, L. A., Prosperetti, A. & Lu, N. Q. An investigation of the collective oscillations of bubble cloud. *J. Acoust. Soc. Am.* **89**, 700–706 (1991).
- Roy, R. A., Carey, W., Nicholas, M., Schindall, J. & Crum, L. A. Low frequency scattering from submerged bubble clouds. *J. Acoust. Soc. Am.* **92**, 2993–2996 (1992).
- Nicholas, M., Roy, R. A., Crum, L. A., Oguz, H. & Prosperetti, A. Sound emissions by a laboratory bubble cloud. *J. Acoust. Soc. Am.* **95**, 3171–3182 (1994).
- Couture, O., Sprague, M., Cherin, E., Burns, P. N. & Foster, F. S. Reflection from bound microbubbles at high ultrasound frequencies. *doi:10.1109/TUFFC.2009.2009.1070* (2009).
- Leroy, V., Strybulevych, A., Scanlon, M. G. & Page, J. H. Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments. *J. Acoust. Soc. Am.* **123**, 1931–1940 (2008).
- Kafesaki, M. & Economou, E. Multiple-scattering theory for three-dimensional periodic acoustic composites. *Phys. Rev. B* **60**, 11993–12001 (1999).

33. Psarobas, I., Stefanou, N. & Modinos, A. Scattering of elastic waves by periodic arrays of spherical bodies. *Phys. Rev. B* **62**, 278–291 (2000).
34. Liu, Z., Chan, C. T., Sheng, P., Goertzen, A. L. & Page, J. H. Elastic wave scattering by periodic structures of spherical objects: Theory and experiment. *Phys. Rev. B* **62**, 2446–2457 (2000).
35. Angel, Y. C. & Aristégui, C. Analysis of sound propagation in a fluid through a screen of scatterers. *J. Acoust. Soc. Am.* **118**, 72–82 (2005).
36. Weston, D. E. Acoustic interaction effects in arrays of small spheres. *J. Acoust. Soc. Am.* **39**, 316–322 (1966).
37. Tolstoy, I. & Tolstoy, A. Line and plane of resonant monopole scatterers. *J. Acoust. Soc. Am.* **87**, 1038–1043 (1990).
38. Leroy, V., Devaud, M. & Bacri, J.-C. The air bubble: experiments on an unusual harmonic oscillator. *Am. J. Phys.* **70**, 1012–1019 (2002).
39. Prosperetti, A. Thermal effects and damping mechanisms in the forced radial oscillations of gas bubbles in liquids. *J. Acoust. Soc. Am.* **61**, 17–27 (1977).
40. Leighton, T. *The Acoustic Bubble* (Academic Press, 1994).
41. Morse, P. M. & Feshbach, H. *Methods of Theoretical Physics* (McGraw-Hill, New York, 1953).
42. Feynman, R. P., Leighton, R. B. & Sands, M. *The Feynman Lectures on Physics*, vol. 2 (Addison Wesley, 1971). Chapter 32.
43. Foldy, L. L. The multiple scattering of waves. *Physical Review* **67**, 107–119 (1945).
44. Sainidou, R., Stefanou, N., Psarobas, I. E. & Modinos, A. A layer-multiple-scattering method for phononic crystals and heterostructures of such. *Computer Physics Communications* **166**, 197–240 (2005).
45. Strasberg, M. The pulsation frequency of nonspherical gas bubbles in liquids. *J. Acoust. Soc. Am.* **25**, 536–537 (1953).
46. Ruffa, A. A. Acoustic wave propagation through periodic bubbly liquids. *J. Acoust. Soc. Am.* **91**, 1–11 (1992).

### 3.2 Cristal de bulles : Bragg et hybridation [Articles 5 et 6]

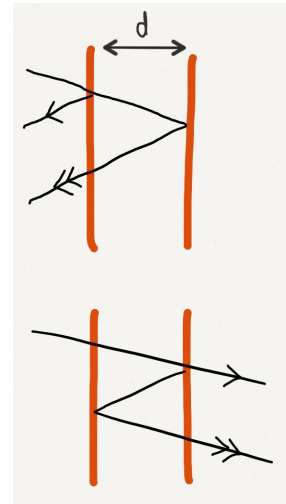
On reproduit ici deux articles courts, l'un paru dans *Applied Physics Letters* en 2009, et le second dans les actes de l'*International Congress on Ultrasonics* en 2011. Il s'agit de travaux réalisés par Alice Bretagne durant sa thèse [41].

Le premier article rapporte la première réalisation expérimentale d'un cristal phononique de bulles. Les bulles étant des diffuseurs acoustiques extrêmement forts, il a été très tôt envisagé d'en faire des cristaux phononiques, et les calculs montraient des propriétés tout à fait exceptionnelles [42]. Cependant, devant les difficultés pratiques, aucune expérience n'avait été faite. Plutôt que de faire des cristaux de bulles d'air dans l'eau,<sup>2</sup> nous nous sommes tournés vers les techniques de lithographie douce pour faire des cristaux de cavités dans un élastomère mou. La procédure de fabrication des cristaux de bulles est décrite en détail dans la [thèse](#) d'Alice Bretagne [41].

Les mesures acoustiques sur des cristaux obtenus par empilement de 4 plans de bulles ont révélé, comme attendu, de larges gammes de fréquences sur lesquelles la transmission était très faible (voir [figures 2 et 3](#) de l'article 5). Ces observations étaient bien décrites par un modèle simple de réflexion multiple entre plans de bulles, en utilisant les formules établies dans la [partie 3.1](#) pour les coefficients de transmission et de réflexion sur un plan unique.

Les cristaux phononiques doivent leurs propriétés particulières à leur ordre. Par exemple, des bandes interdites de propagation émergent, dues aux interférences destructives entre les différents ordres de réflexion multiple, comme illustré sur la [figure 3.4](#). On les appelle parfois "bandes de Bragg", parce que le mécanisme est le même que celui imaginé par Bragg, père et fils, pour expliquer les pics de réflexion des rayons X observés sur les cristaux.

FIGURE 3.4 – Les réflexions par deux plans séparés d'une distance  $d$  interfèrent constructivement si  $2kd = 2\pi$ . On observe donc un pic de réflexion des rayons X pour une longueur d'onde  $\lambda = 2d$ . Pourtant, le second schéma permet de se convaincre que si  $2kd = 2\pi$ , c'est la transmission qui est plus forte. Paradoxe ? En fait l'explication vient d'un déphasage supplémentaire induit par la transmission ou la réflexion. Les coefficients de transmission  $t$  et de réflexion  $r$  se mettent sous la forme  $r = iA/(B - iA)$  et  $t = B/(B - iA)$ , avec  $A$  et  $B$  quelconque (pour des raisons de continuité et de conservation de l'énergie). On trouve alors que si les réflexions sont faibles ( $A \ll B$ ),  $r$  est imaginaire, ce qui induit un déphasage supplémentaire de  $\pi$  dans le second schéma, et  $d = \lambda/2$  conduit bien à un minimum de transmission. En revanche, si les transmissions sont faibles ( $A \gg B$ ),  $t$  est imaginaire et ce sont les deux transmissions du premier schéma qui entraînent un déphasage de  $\pi$ . Pour les bulles,  $d = \lambda/4$  donne donc le premier minimum de transmission.



Quand les diffuseurs qui constituent le cristal sont résonants, comme dans le cas des bulles, on a aussi apparition d'une bande interdite, qu'on appelle bande d'hybridation. Bandes de

2. Nous avons essayé, mais avec un succès limité [43].



Bragg et d'hybridation ont donc deux origines différentes (voir figure 3.5) :

- les premières proviennent de la structure régulière du milieu et émergent quand la **longueur d'onde** devient de l'ordre du pas du réseau,
- les secondes proviennent des diffuseurs, et émergent quand la **fréquence** devient de l'ordre de la fréquence de résonance

Les cristaux phononiques de bulles offrent une belle opportunité d'étudier l'interaction entre ces deux types de bandes interdites. L'article 6 reproduit ci-dessous propose de regarder comment résonances locales et interférences de Bragg cohabitent quand le cristal est fabriqué de telle sorte que les deux phénomènes interviennent à la même fréquence. C'est une façon de répondre à la question : est-ce qu'une bulle va se comporter différemment si on la place dans un cristal dont la bande interdite est justement à sa fréquence de résonance ? Dans notre exemple, la transmission à travers une seule couche de bulles permet de mesurer la fréquence à laquelle les résonances des bulles vont se faire sentir. On trouve 530 kHz. On règle donc le pas du réseau pour que la première bande interdite de Bragg soit à cette fréquence :  $d = \lambda/4 = 470 \mu\text{m}$ .<sup>3</sup> En construisant un cristal avec un tel pas, on obtient un minimum de transmission particulièrement marqué à 530 kHz, les deux effets allant dans la même sens (figure 2 de gauche). En revanche, un cristal avec un pas double donne lieu à des interférences constructives à 530 kHz et on fait émerger un pic de transmission au milieu de la bande d'hybridation (figure 2 de droite). Ces observations sont bien prédites par le modèle en couches. En fait d'interaction entre les deux effets, on observe donc une simple juxtaposition, qu'un principe de superposition décrit parfaitement.

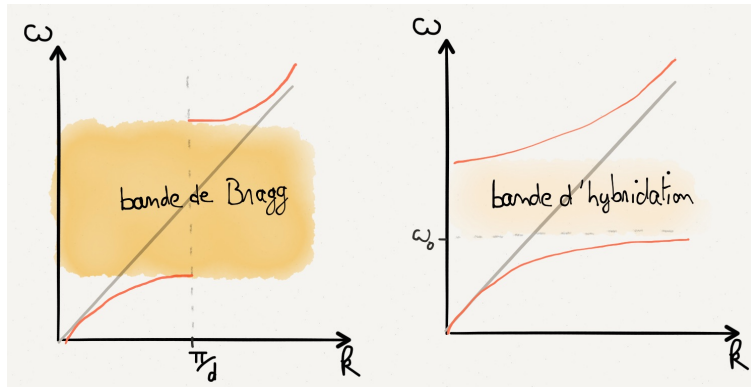


FIGURE 3.5 – Illustration schématique de la différence entre une bande interdite de Bragg (à gauche) et une bande interdite d'hybridation (à droite). La relation de dispersion dans le milieu hôte est donnée par la droite grise, tandis que celle du milieu est en rouge.

3. Précisons que la vitesse du son dans l'élastomère considéré (du PDMS) est de 1000 m/s.



## Design and characterization of bubble phononic crystals

Valentin Leroy,\* Alice Bretagne, Mathias Fink, and Arnaud Tourin  
*Institut Langevin, ESPCI ParisTech, CNRS UMR 7587,  
 Université Paris 7 Laboratoire Ondes et Acoustique,  
 10 rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 05, France*

Hervé Willaime and Patrick Tabeling  
*MMN, Gulliver, ESPCI ParisTech, 10 rue Vauquelin 75005 Paris, France*  
 (Dated: October 5, 2009)

We report the practical realization of phononic crystals with gas inclusions, using soft lithography techniques. Ultrasonic experiments from 0.3 to 5 MHz confirm the existence of deep and wide minima of transmission through the crystal. We show that the first gap is due to the combined effects of Bragg reflections and bubble resonances. We propose a simple layered model that gives a reasonable prediction of the ultrasonic transmission.

Multiple scattering of waves is responsible for a wide range of fascinating phenomena such as band gaps in periodic structures [1, 2] and strong localization in disordered media [3]. Ultrasound in the MHz range are particularly well-suited to study these phenomena because in that case samples are macroscopic and the phase of the wavefield can be directly measured. Taking advantage of these two points, weak and strong localization have been studied with ultrasound in the past years [4, 5]. As to strong localization, bubble clouds have been presented as promising candidates for observing it [6]. It has also been predicted that crystals made of air inclusions in a fluid matrix must exhibit the widest band gaps ever reported [7, 8]. The particular status of bubbles in acoustics comes from their huge resonance, the so-called Minnaert resonance, at a frequency  $\omega_0 = \sqrt{3\beta_{\text{gas}}/\rho}/R$ , where  $\beta_{\text{gas}}$  is the longitudinal modulus of the gas,  $\rho$  the mass density of the liquid, and  $R$  the radius of the bubble. This resonance has a special feature, responsible for the uncommon properties of bubbly media, which is its low frequency:  $\omega_0 R/v \ll 1$ , where  $v = \sqrt{\beta/\rho}$  is the velocity of sound in the liquid.

Nevertheless, no experimental evidence of localization through disordered bubble clouds or band gaps through bubble crystals have been brought until now. Two reasons are experimental: building a perfectly controllable sample with monodisperse bubble size is a difficult task. Another difficulty is the strong absorption occurring at resonance, which can make transmission results difficult to interpret. Besides experimental issues, some debates still exist concerning the theoretical interpretation of numerical works, although absorption and bubble size can be tuned as wanted in that case. Some authors have indeed reported a huge decrease in acoustic transmission through both periodic and disordered bubble assemblies near individual resonances of bubbles and have interpreted it as a manifestation of acoustic localization [9].

In this article, we propose a solution to tackle the experimental difficulties associated with the production and control of bubbles. The idea is to have bubbles em-

bedded in an elastic matrix rather than a liquid. In that case, the shear modulus  $\mu$  of the matrix plays a role in the resonance frequency which becomes  $\omega_0 = \sqrt{(3\beta_{\text{gas}} + 4\mu)/\rho}/R$  [10]. Therefore, it appears that a bubble in a *stiff* medium ( $\mu \simeq \beta$ ) does not exhibit a low frequency resonance. However if the matrix is *soft* enough ( $\mu \ll \beta$ ), the low-frequency character of the resonance is preserved, implying that bubbly *soft* elastic materials would also have interesting acoustic properties, as bubbly liquids. The practical interests are significant: while bubbly liquids are unstable and difficult to control, bubbly soft elastic media can be steady and designed.

We present an example of such a bubbly soft elastic material: a phononic crystal made of polydimethylsiloxane (PDMS) with air inclusions. PDMS complies with the soft-medium requirement:  $\mu \simeq 0.6$  MPa,  $\beta \simeq 1$  GPa [11]. Besides, its mechanical and optical properties have made it a first choice material for many microelectromechanical system (MEMS) applications, which means that well-established micro-fabrication techniques have been developed for PDMS.

The samples were fabricated in RTV615 (Bayers Silicones), using the standard soft lithography procedure employed in microfluidics.

We created 5 cm-diameter molds with 2D periodic arrangements of cylinders (diameter  $d = 78 \mu\text{m}$ , height  $h = 50 \mu\text{m}$ , lattice constant  $a_x = a_y$ ). A thin layer of PDMS (monomer and hardener with a 10:1 weight ratio) was then deposited on the mold by spincoating (50 seconds at 100 rpm) and cured at 70 °C for 1 hour. By stacking  $N$  patterned layers and closing the structure with a pure PDMS layer, we obtained a 3D crystal such as the one depicted in Fig. 1. Two different molds were fabricated with different lattice constants:  $a_x = 300 \mu\text{m}$  and  $a_x = 200 \mu\text{m}$ . From these two molds, two 1-layer crystals and two 4-layer crystals with  $a_z = 360 \mu\text{m}$  were created.

Alignment of the layers was a problematic issue. The results shown in this article were obtained with imperfect crystals: each layer was perfectly ordered and successive

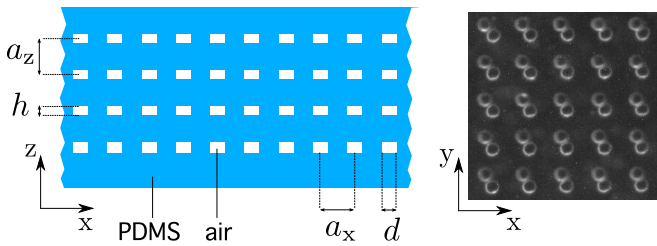


FIG. 1: (Left) Side-view schematic of a 4-layer phononic crystal. (Right) Top view of two successive misaligned layers.

layers were separated by the same distance, but alignment from one layer to the other was not insured (see Fig. 1). Ultrasonic measurements were carried out in a large water tank. A piezoelectric transducer generated a short pulse that propagated through water, traversed the sample along  $z$  direction, and reached a receiving transducer. The sample was placed in the far field of the transducers and, to reduce spurious signals coming from the edges, it was mounted on the aperture (4 cm-diameter) of an acoustically opaque screen. The transmission factor was obtained by calculating the ratio of the Fourier transforms of the signals acquired with and without the sample in the path of the acoustic beam. Two pairs of transducers were used, with central frequencies of 1 and 3.5 MHz, allowing us to measure the transmission between 0.3 and 5 MHz.

It was checked that there was no ultrasonic reflection from the interface between two layers of plain PDMS, thus insuring that our samples of stacked layers could be considered as 3D blocks of PDMS with air inclusions. We also measured the phase velocity and attenuation of ultrasound in pure PDMS and found  $v = 1.02 \text{ mm}/\mu\text{s}$ , in accordance with previously reported values [12], and  $\alpha = 0.023(\omega/2\pi)^{1.45} \text{ mm}^{-1}$  (with frequency  $\omega/2\pi$  in MHz). Figure 2 shows the measured ultrasonic transmission along the  $z$  axis through a 4-layer crystal with  $a_x = 300 \mu\text{m}$ ,  $a_z = 360 \mu\text{m}$ . There is a deep minimum in transmission at 0.6 MHz, and a less marked one at 1.6 MHz. Considering the finite thickness of the sample (1.8 mm), the depth of the first minimum is remarkably large. In comparison, the first gap for a 4-layer crystal of close-packed 0.8 mm diameter tungsten carbide beads in water is one order of magnitude less deep [13]. As shown in figure 3, a bubble phononic crystal can offer even deeper band gaps when the number of bubbles per unit volume is increased: with  $a_x = 200 \mu\text{m}$ , the two minima are more pronounced at 0.8 and 1.7 MHz, and there is a third small minimum around 3 MHz.

It is interesting to compare transmission through the 4-layer crystals and through their corresponding 1-layer crystals (circles in figures 2 and 3): even with a single layer, the first minimum is visible, at the same frequency. It has been shown that this minimum in transmission was

due to the resonance of the air inclusions [14]. However, bubbles resonance does not alone explain the depth of the first minimum. Indeed, the horizontal dotted lines in figures 2 and 3 correspond to the fourth power of the minimum of transmission through the 1-layer crystals, *i.e.* the level one can expect through the 4-layer crystals if multiple reflections are neglected. The measured minima are 2 to 4 times deeper because the Bragg reflections also contribute to the decrease of the transmission in this frequency range: for  $a_z = 360 \mu\text{m}$ , the first Bragg minimum is indeed expected at 0.7 MHz.

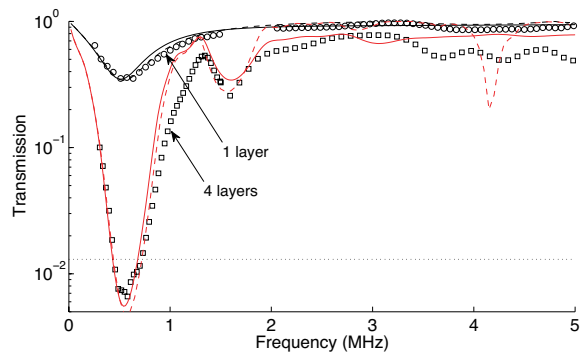


FIG. 2: Transmission of ultrasound measured through a 1-layer crystal (circles) and a 4-layer crystal (squares) with lattice constants  $a_x = 300 \mu\text{m}$  and  $a_z = 360 \mu\text{m}$ . Solid and dashed lines: predictions of the layered model and MST, respectively. Horizontal dotted line: minimum of the one-layer transmission to the fourth power.

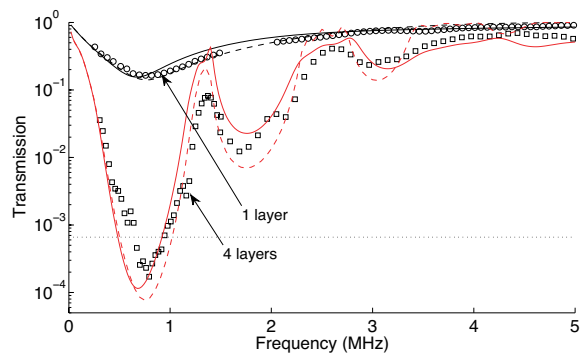


FIG. 3: Transmission of ultrasound measured through a 1-layer crystal (circles) and a 4-layer crystal (squares) with lattice constants  $a_x = 200 \mu\text{m}$  and  $a_z = 360 \mu\text{m}$ . Solid and dashed lines: predictions of the layered model and MST, respectively. Horizontal dotted line: minimum of the one-layer transmission to the fourth power.

We propose a simple model in which each layer of bubbles is treated as a partially reflective infinitely thin layer with a reflection coefficient  $r$  and a transmission coefficient  $t = 1 + r$ . An iterative process then leads to the

following expressions for the reflection  $R_N$  and the transmission  $T_N$  through  $N$  thin layers ( $N > 1$ ) separated by a distance  $a_z$ :

$$T_{N+1} = \frac{tT_N}{1 - R_N r e^{2ika_z}} \quad (1a)$$

$$R_{N+1} = r + R_N \frac{t^2 e^{2ika_z}}{1 - R_N r e^{2ika_z}}, \quad (1b)$$

where  $k$  is the wave number in the material between the thin layers. For  $N = 1$ ,  $T_1 = t$  and  $R_1 = r$ .

Following [14], we consider that the reflection from one layer of bubbles is given by

$$r = \frac{Kf}{1 - Kf e^{ika_x/\sqrt{\pi}}}, \quad (2)$$

where  $K = 2i\pi/(ka_x^2)$ , and  $f$  the scattering function of the bubble:  $f = R/(\omega_0^2/\omega^2 - 1 - i\delta)$ , with  $R$  the radius of the bubbles,  $\omega_0$  their resonant angular frequency and  $\delta$  their damping constant [15]. This expression was shown to be a good approximation for  $ka_x \ll 1$  and  $a_x/R > 3.6$  [14]. Note that we assume that the wavelength is large enough compared to the size of the air inclusions to consider that cylinders are acoustically equivalent to spheres with  $R = 38 \mu\text{m}$  (*i.e.*, spheres with the same volume as the cylinders) [16].

The only unknown parameter in our layered model is the shear modulus of the PDMS  $\mu = \mu' + i\mu''$ . Good agreement is found when  $\mu' = \mu'' = 1.6 \text{ MPa}$  (see figures 2 and 3). This value seems realistic because it lies between the low frequency value (0.6 MPa) and the value we found at 10 MHz with shear waves velocity measurements ( $\mu' = \mu'' \simeq 2.5 \text{ MPa}$ ). We also computed a multiple scattering theory (MST) calculation with the same parameters, using the program MULTTEL [17]. Both models give correct predictions of the positions and levels of the transmission minima. Agreement between the models is an indication that, in our samples and for normal incidence, band gaps are robust to bad alignment from one layer to the other. We have shown that phononic crystals of bubbles could be designed using soft lithography techniques. Transmission measurements in  $\Gamma Z$  direction of the crystals, over the 0.3-5 MHz frequency range, exhibited deep minima, which we interpreted as band gaps. We showed that, for the first band gap, the resonance of the bubbles conjugated with the Bragg reflections to block the propagation of acoustic waves. A simple model was proposed which gives good predictions of the transmission. As this model has an easy analytical expression, it

can be useful for a quick estimation of the properties of a phononic crystals of bubbles. Although the technique we used to create crystals of bubbles is perfectible (in particular alignment), it offers promising perspectives for the design of acoustic metamaterials using the low frequency resonance of bubbles to tailor new acoustic properties.

We thank R. Sainidou for providing an extended version of Multel, and F. Monti for helping us in the micro-fabrication process.

---

\* Present address: Laboratoire Matière et Systèmes Complexes, Université Paris Diderot-Paris 7, CNRS (UMR 7057), France; Electronic address: [valentin.leroy@univ-paris-diderot.fr](mailto:valentin.leroy@univ-paris-diderot.fr)

- [1] M. S. Kushwaha, P. Halevi, G. Martínez, L. Dobrzynski, and B. Djafari-Rouhani, Phys. Rev. B **49**, 2313 (1994).
- [2] A. Khelif, A. Choujaa, S. Benchabane, B. Djafari-Rouhani, and V. Laude, Applied Physics Letters **84**, 4400 (2004).
- [3] A. Lagendijk, B. van Tiggelen, and D. S. Wiersma, Physics Today **62**, 24 (2009).
- [4] A. Tourin, A. Derode, P. Roux, B. A. van Tiggelen, and M. Fink, Phys. Rev. Lett. **79**, 3637 (1997).
- [5] H. Hu, A. Strybulevych, J. H. Page, S. E. Skipetrov, and B. A. van Tiggelen, Nature Physics **4**, 945 (2008).
- [6] C. A. Condat and T. R. Kirkpatrick, Phys. Rev. B **36**, 6782 (1987).
- [7] M. S. Kushwaha, B. Djafari-Rouhani, and L. Dobrzynski, Physics Letters A **248**, 252 (1998).
- [8] M. Kafesaki, R. S. Penciu, and E. N. Economou, Phys. Rev. Lett. **84**, 6050 (2000).
- [9] Z. Ye and H. Hsu, Applied Physics Lett. **79**, 1724 (2001).
- [10] V. N. Alekseev and S. A. Rybak, Acoustical Physics **45**, 535 (1999).
- [11] F. Schneider, T. Fellner, J. Wilde, and U. Wallrabe, J. Micromech. Microeng. **18**, 1 (2008).
- [12] C. G. Delides and T. A. King, J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2 **75**, 359 (1979).
- [13] J. H. Page, A. Sukhovich, S. Yang, M. L. Cowan, F. V. D. Biest, A. Tourin, M. Fink, Z. Liu, C. T. Chan, and P. Sheng, physica status solidi (b) **241**, 3454 (2004).
- [14] V. Leroy, A. Strybulevych, M. G. Scanlon, and J. H. Page, Eur. Phys. J. E **29**, 123 (2009).
- [15] T. Leighton, *The Acoustic Bubble* (Academic Press, 1994).
- [16] M. Strasberg, J. Acoust. Soc. Am. **25**, 536 (1953).
- [17] R. Sainidou, N. Stefanou, I. Psarobas, and A. Modinos, Computer Physics Communications **166**, 197 (2005).

# Bragg and Hybridization Gaps in Bubble Phononic Crystals

Alice Bretagne\*, Bastien Venzac\*, Valentin Leroy† and Arnaud Tourin\*

\**Institut Langevin, ESPCI ParisTech, CNRS UMR 7587, Université Paris 7 Laboratoire Ondes et Acoustique, 10 rue Vauquelin, 75 231 Paris Cedex 05, France*

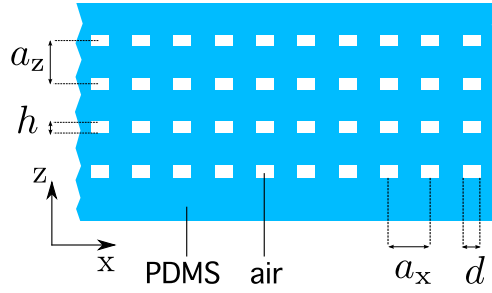
†*Laboratoire Matière et Systèmes Complexes, Université Paris Diderot-Paris 7, CNRS (UMR 7057), France*

**Abstract.** We experimentally investigate the existence of Bragg and hybridization gaps in 3D bubble phononic crystals. Soft-lithography techniques allow us to tune the lattice constant, so that we can highlight the interactions between the two types of gaps. We show that a layered model provides a simple physical picture of the phenomenon.

**Keywords:** Phononic crystal, Band gap, hybridization, low-frequency resonance

**PACS:** 43.20.+g, 63.20.D

Among all the components one can think of to create a phononic crystal, the case of air bubbles in a liquid has been shown to be a very promising choice. Theories predict indeed that crystals with air inclusions in a liquid exhibit the widest band gaps ever reported [1, 2]. However, the practical implementation is difficult: generating equally sized bubbles arranged on a crystal lattice is not an easy task. Recently, we have shown that soft lithography techniques were efficient for building bubbly soft elastic materials, including 3D phononic crystals of bubbles [3]. Transmission measurements have confirmed the existence of wide and deep minima of transmission.



**FIGURE 1.** The crystals are made by stacking layers of 2D arrays of cylindrical inclusions (referred to as “bubbles”) in PDMS.

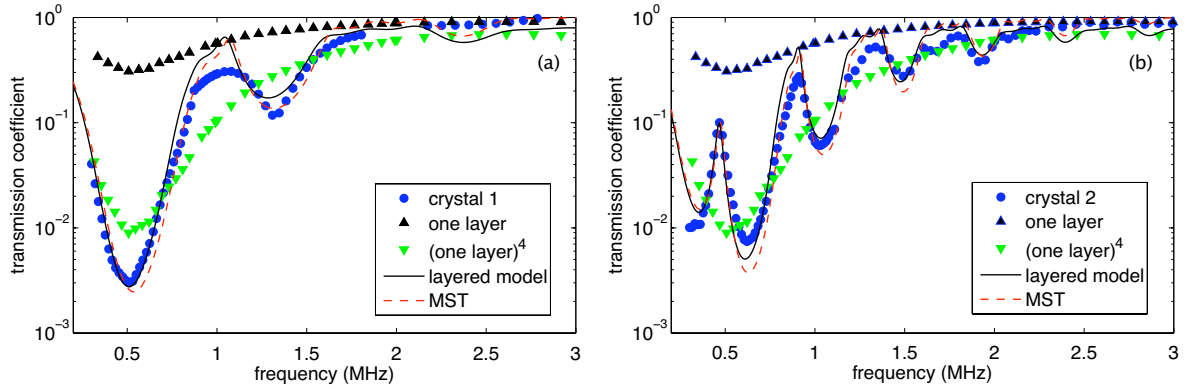
**TABLE 1.** Lattice constants and size of the bubbles for the 3 samples investigated. Note that  $a_y = a_x$ .

Sample	$a_z$ ( $\mu\text{m}$ )	$a_x$ ( $\mu\text{m}$ )	$h$ ( $\mu\text{m}$ )	$d$ ( $\mu\text{m}$ )
One layer	/	300	50	78
Crystal 1	475			
Crystal 2	1150			

In phononic crystals, besides the Bragg gaps (BG) due to the periodicity of the structure, one can expect hybridization gaps (HG) induced by coupling between a scattering resonance and the propagation mode of the embedding medium [4, 5, 6]. These two types of gaps have different behaviors (e.g., an HG survives to disorder, while a BG is intrinsic to order), and the question of how they can interact arises. For instance, one can wonder what occurs if the central frequency of a BG is tuned so that it corresponds to the frequency of a resonance generating an HG. This is the question we want to address. As bubbles are strong acoustic scatterers with a low frequency resonance, crystals of bubbles are perfect candidates for exhibiting strong HG. It is indeed well-known that, in bubbly liquids, acoustic waves are evanescent when the frequency is close to the resonance of the bubbles. Moreover, the soft-lithography technique offers the opportunity to easily modify the lattice constant of the 3D crystal, so that the position of the BG can be tuned, an advantage which is usually specific to 2D systems [6].

Details on the technique for making the samples can be found in ref [3]. A schematic view of the simple cubic system is shown in Figure 1, and the characteristics of three samples investigated are given in Table 1.

All the acoustic measurements were made in the  $z$  direction. We first investigated the transmission through one layer of bubbles (upward-pointing triangles in figure 2). In this configuration, only the HG is visible, and the minimum of transmission is found at 530 kHz. At this frequency, the wavelength in PDMS is about  $\lambda = 1.9$  mm. It means we need to take  $a_z = \lambda/4 = 470 \mu\text{m}$  for obtaining a BG at the same frequency. That is what we have done for crystal 1 (see Table 1). The transmission of ultrasound through crystal 1 is shown in figure 2a (solid circles): it is remarkably low for a sample whose thickness is less than 2 mm and in which the volume fraction of scatterers is 0.6 %. Note that the intrinsic attenuation in PDMS is negligible here. It appears that the transmission around 0.5 MHz is lower than what a simple extrapolation of the one-layer transmission predicts (downward-pointing triangles in figure 2a), due to the additional effect of the BG.



**FIGURE 2.** Transmission coefficients for crystal 1 (left) and crystal 2 (right) as functions of the frequency.

To investigate further the interaction between the two gaps, we made crystal 2 with a lattice constant  $a_z$  close to  $\lambda/2 = 940 \mu\text{m}$ , so that it corresponds to a maximum of transmission at 530 kHz. The result of the transmission experiment through this new crystal is shown in Figure 2b. Contrary to the previous case, the Bragg reflections build a peak of transmission in the HG, similarly to a resonant tunneling [7]. Figure 2 also gives the predictions of the Multiple Scattering Theory (MST) and the ones of a layered model [3]. Both give a satisfactory agreement with the experimental data. The success of the simple layered model allows us to draw a simple physical picture of what is happening. Indeed, the layered model is a 1D description of the crystal in which each layer of bubbles is treated as a partially reflective layer with a reflection coefficient  $r$  and a transmission coefficient  $t = 1 + r$ . The Bragg reflections are taken into account by an iterative process. It follows that, to a first approximation, the HG depends on the parameters of the layers ( $a_x, a_y, h, d$ ), whereas the BG is governed by the distance between the layers ( $a_z$ ). Note that this simple description probably breaks down if the direction of propagation is not normal, or if the lattice constants are too small; but it provides useful guidelines for the design of bubble crystals.

## ACKNOWLEDGMENTS

We thank J. H. Page and P. Tabeling for numerous and valuable discussions.

## REFERENCES

1. M. S. Kushwaha, and B. Djafari-Rouhani, and L. Dobrzynski, *Physics Letters A* **248**, 252 (1998).
2. M. Kafesaki, and R. S. Penciu, and E. N. Economou, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 6050 (2000).
3. V. Leroy, and A. Bretagne, and M. Fink, and H. Willaime, and P. Tabeling, and A. Tourin, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 171904 (2009).
4. I. E. Psarobas, and A. Modinos, and R. Sainidou, and N. Stefanou, *Phys. Rev. B* **65**, 064307 (2002).
5. T. Still, and W. Cheng, and M. Retsch, and R. Sainidou, and J. Wang, and U. Jonas, and N. Stefanou, and G. Fytas, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 194301 (2008).
6. E. J. S. Lee, and J. H. Page, Proceedings of Symposium on Ultrasonic Electronics, 461-462 (2009).
7. F. Van Der Biest, and A. Sukhovich, and A. Tourin, and J. H. Page, and B. Van Tiggelen, and Z. Liu, and M. Fink, *Europhysics Lett.* **71**, 63 (2005).



### 3.3 Super absorption [Article 7]

Un plan de bulles présente un minimum de transmission très marqué. Pour autant, cette faible transmission ne correspond pas, en général, à une absorption importante de l'énergie acoustique. On trouve plutôt que c'est le coefficient de réflexion qui est proche de 1. L'article publié dans *Physical Review B* en 2015, reproduit ci-dessous, avait pour but d'étudier les performances d'absorption d'un plan de bulles [44].

Le grand avantage de disposer d'une formule analytique, plutôt que de faire des calculs numériques, est qu'on peut facilement trouver les paramètres qui optimisent les caractéristiques désirées du système. Pour le plan de bulles, connaître sa fonction de réponse (voir l'équation (3.3)) nous permet de déterminer son coefficient d'absorption qui vaut, pour la fréquence du minimum de transmission,

$$A = \frac{2\delta Ka}{(\delta + Ka)^2}, \quad (3.4)$$

où  $\delta$  désigne ici le taux d'amortissement dissipatif d'une bulle,  $a$  le rayon des bulles, et  $Ka = 2\pi a/(k_0 d^2)$  le taux d'amortissement super-radiatif du plan. On trouve donc que l'absorption est maximale pour  $Ka = \delta$ , c'est à dire lorsque les pertes radiatives sont accordées aux pertes visqueuses. Dans ce cas, le plan de bulles absorbe, à résonance, la moitié de l'énergie incidente. C'est un résultat remarquable parce qu'on est dans une situation où une grande partie de l'énergie incidente est absorbée sur une échelle bien plus petite que la longueur d'onde. C'est en ce sens que l'on parle généralement de “super-absorption”. Le plan de bulles offre un atout supplémentaire : de façon inespérée, les termes de dissipation et de rayonnement ont la même dépendance en fréquence, ce qui signifie que si l'accord est obtenu à résonance, il sera maintenu pour toutes les fréquences. Comme en plus le plan de bulles est un oscillateur harmonique sur-amorti, la condition d'absorption n'est pas limitée à la fréquence de résonance, mais s'étend sur une gamme de fréquences très large. On observe ainsi sur la [figure 2](#) de l'article 7 que transmission et réflexion de la pression sont à 1/2 (et donc l'absorption de l'énergie à 1/2 aussi) sur quasiment toute la gamme de fréquences explorée.

Cette condition d'accord des pertes radiatives et dissipatives pour maximiser l'absorption est connue sous le nom de “couplage critique” dans la théorie des guides d'onde. On la retrouve de façon tout à fait générale dès qu'une onde interagit avec un résonateur ouvert. Bliokh *et al.* l'ont utilisée de façon remarquable pour expliquer, en électromagnétisme, de nombreux effets faisant intervenir un couplage entre des résonances de surface (de type plasmon-polariton) et des ondes propagatives [45].

D'un point de vue pratique, satisfaire à la condition de couplage critique pour le plan de bulles s'obtient en choisissant le bon pas du réseau (qui règle les pertes radiatives) en fonction de la viscosité du milieu hôte (qui dicte les pertes visqueuses, les pertes thermiques étant ici négligeables). On obtient alors une viscosité critique  $\eta^* = (\pi Z a^3)/(2d^2)$ , où  $Z$  désigne l'impédance acoustique du milieu hôte. Des simulations par éléments finis ont confirmé les prédictions du modèle analytique (voir encore la [figure 2](#) de l'article).

L'histoire pour le plan de bulles ne s'arrête pas là. On montre qu'en jouant sur le rapport entre  $\delta$  et  $Ka$ , on peut ajuster les valeurs des coefficients de transmission et de réflexion. Ainsi,

on peut choisir d'avoir une forte réflexion en diminuant le pas du réseau  $d$  (on concentre le plan) ou au contraire une bonne transmission en augmentant  $d$  (on dilue le plan), comme le montre la [figure 2](#). Cette latitude révèle toute son importance lorsqu'on s'intéresse au cas particulier d'un plan de bulles proche d'une surface parfaitement rigide. Une analyse des réflexions multiples à l'œuvre entre le plan de bulles et le réflecteur montre qu'on a une réflexion directe sur le plan, avec un coefficient  $r$ , et une réflexion multiple, avec un coefficient  $t^2/(1-r)$  (en supposant que la distance entre le plan de bulles et le réflecteur est négligeable devant la longueur d'onde). En notant que  $t = 1 + r$ , on trouve que si  $r = -1/3$  les deux termes se compensent : la réflexion est nulle. En choisissant judicieusement la structure du plan de bulles, on peut donc obtenir un revêtement très fin qui transforme un réflecteur parfait en un absorbeur. C'est ce qu'illustrent les [figure 3 et 4](#) de l'article 7, qui présentent des résultats expérimentaux obtenus avec une couche d'élastomère bulleux, optimisée, sur un bloc d'acier.



# Super-Absorption of Acoustic Waves with Bubble Meta-Screens

Valentin Leroy,<sup>1</sup> Anatoliy Strybulevych,<sup>2</sup> Maxime Lanoy,<sup>3,1</sup> Fabrice Lemoult,<sup>2,3</sup> Arnaud Tourin,<sup>3</sup> and John H Page<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Laboratoire Matière et Systèmes Complexes, Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), Paris, France*

<sup>2</sup>*Department of Physics and Astronomy, University of Manitoba, Winnipeg, Canada*

<sup>3</sup>*ESPCI Paris Tech, PSL Research University, CNRS, Institut Langevin, F-75005 Paris*

(Dated: December 3, 2014)

A bubble meta-screen, i.e. a single layer of gas inclusions in a soft solid, can be modeled as an acoustic open resonator, whose behavior is well captured by a simple analytical expression. We show that by tuning the parameters of the meta-screen, acoustic super-absorption can be achieved over a broad frequency range, which is confirmed by finite element simulations and experiments. Bubble meta-screens can thus be used as ultra thin coatings for turning acoustic reflectors into perfect absorbers.

Waves carry energy. In many situations, absorbing as much as possible of this energy is desirable. One may want, for instance, to convert the mechanical energy of ocean swell into electrical energy, or to detect very weak electromagnetic waves, or just to limit the nuisance due to acoustic noise. Absorbing all the energy of an incoming wave requires that two problems be tackled : not only must the transmission be reduced to zero, but the reflection as well. This means that a very dissipative medium that is not impedance-matched to the environment is not a solution: the incoming wave will reflect from it without losing much of its energy. An absorber thus consists in a lossy material (to reduce transmission) with an impedance close to that of the environment (to reduce reflection). Perfect absorption can be easily achieved if the thickness of the material is large enough for all the energy to be dissipated. However, in practice, one often wants the absorber to be as small and light as possible, requiring a thin piece of material. Minimizing the thickness of the absorber and, ideally, reaching a sub-wavelength structure, is the issue of super-absorption.

Metamaterials are the key to achieve super-absorption. These materials are made of “meta-molecules”, i.e., local resonators that can couple to the incoming wave despite being small compared to the wavelength. By designing judiciously the structure of a metamaterial, one can obtain exotic properties such as negative refraction [1–4], invisibility cloaks [5–8], sub-wavelength focusing [9, 10], or super absorption [11–16]. Many types of resonators have been identified and investigated, from split rings for electromagnetic waves [11] to loaded membranes for acoustic waves [14, 15]. Here we consider a particularly simple resonator that is well known to couple strongly with water-borne acoustic waves: the gas bubble.

In this letter, we show how a very efficient absorber of acoustic waves can be constructed from a single deeply-subwavelength layer of bubbles immersed in a soft elastic matrix. While most previous research has investigated either narrow band superabsorption of air-borne sound in subwavelength metalayers, or broadband absorption for larger metastructures, we demonstrate that the ideal situation of broadband superabsorption can be

achieved for water-borne acoustic waves in a single met-layer that is much thinner than the wavelength. The key to the success of our approach is an *analytic* model that reveals directly how the local structure of the meta-material can be tuned to optimize the absorption. We validate the model predictions with simulations and ultrasonic experiments, which demonstrate peak absorption greater than 97% and broadband absorption greater than 91% for frequencies that extend over a factor of two in range. At the absorption peak, the experiments show that the reflectance of our optimized metastructure is almost zero (less than 0.2%). Our results demonstrate how new anechoic coatings with optimum performance can be designed for technologically relevant applications of water-borne acoustic waves.

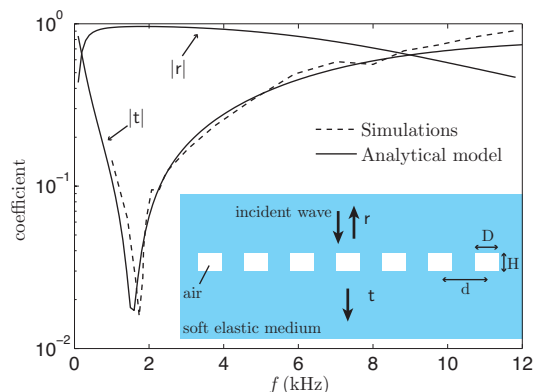


FIG. 1: Comparison between Eq. (1b) and simulation data extracted from figure 16 in Hladky-Henion et al. [20], for the transmission coefficient through a layer of air cylinders ( $H = 2$  cm,  $D = 1.5$  cm) on a square lattice ( $d = 5$  cm) in silicone.

The structure we consider is sketched in the inset of Fig. 1: the bubble meta-screen consists of a layer of gas cylinders in a soft solid, here organized on a square lattice. It has been shown that, at low frequencies, providing that the aspect ratio of the cylinders is close to unity and the shear modulus  $\mu$  of the soft solid is not too high

( $\mu < 10$  MPa), the cavities can be modeled as spherical bubbles of the same volume [17–19]. In particular, the cavities exhibit a low-frequency resonance, similar to the Minnaert resonance:  $\omega_0 = \sqrt{(3\beta_g + 4\mu)/\rho}/a$ , where  $\beta_g$  is the bulk modulus of the gas,  $\rho$  the density of the solid, and  $a$  the radius of the bubble [ $a = (3D^2H/16)^{1/3}$ , with the notations of Fig. 1’s inset]. Calculating the transmission and reflection coefficients for an incident longitudinal wave on such a structure is a complicated matter. Indeed, the coupling between the cavities is too strong to be neglected, and shear waves also need to be taken into account, two factors that make numerical simulations computationally intensive [20, 21]. However, a simple model was recently proposed [22] to calculate the transmission and reflection from a single layer of bubbles. It predicts that an incoming plane pressure wave  $\exp[i(kx - \omega t)]$ , at angular frequency  $\omega$  and with wavenumber  $k$ , is reflected and transmitted with coefficient  $r$  and  $t$  given by

$$r = \frac{iKa}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - I - i(\delta + Ka)}, \quad (1a)$$

$$t = 1 + \frac{iKa}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - I - i(\delta + Ka)}, \quad (1b)$$

where  $K = 2\pi/(kd^2)$ ,  $I = 1 - Ka \sin(kd/\sqrt{\pi})$ , and  $\delta$  is the dissipative damping constant. This model has been experimentally confirmed for bubbles in a yield-stress fluid [22] and for air cylinders in an elastomer [17], in the ultrasonic frequency range. In Fig. 1, we show it also gives good agreement with simulations in the audible frequency range, for cylindrical cavities in silicone [20]. Hence, Eqs. (1) provide a reliable *analytic* expression for predicting the response of a bubble meta-screen. The interest is twofold: an analytic formula allows one to identify the mechanisms involved in the response, and it also makes easier the analysis of the role of each parameter, in the perspective of an optimization process for instance.

The strong coupling between the resonators is taken into account by the model with the two terms  $I$  and  $K$ . The first one is responsible for a slight shift in the resonance of the structure, which occurs at  $\omega_0/\sqrt{I}$  instead of  $\omega_0$  for independent scatterers. The second one is crucial because it determines the way the meta-screen couples to the longitudinal waves. Indeed, the term  $Ka$  that appears in Eqs. (1) can be interpreted as a super-radiative damping term. When a bubble oscillates, it loses energy because of dissipation, but also because it radiates acoustic energy into the surrounding medium. For a single bubble, the corresponding damping term is  $ka$ . When  $N$  bubbles oscillate in phase, they radiate  $N$  times more intensely [23]. In a layer of bubbles, the number of bubbles coupled in phase with each other can be estimated by  $N = (\lambda/d)^2$  where  $\lambda = 2\pi/k$  is the wavelength. So  $Ka$  can be written as  $Nka/(2\pi)$ , i.e., a damping term proportional to  $N$  times the radiative damping of a single bubble. As the Minnaert resonance is at low frequency,

$N$  is large. For instance in Fig. 1,  $\lambda \simeq 70$  cm at minimum of transmission, which yields  $N \simeq 200$  and  $Ka \simeq 3$ .

As illustrated by Fig. 1, a layer of bubbles is very efficient for blocking acoustic waves at frequencies close to the resonance frequency of the bubbles. However, one should not conclude that the incident energy is dissipated by the bubbles. At the minimum of transmission (i.e., for  $\omega = \omega_0/\sqrt{I}$ ), Eq. (1a) predicts a reflection coefficient of  $r = -Ka/(\delta + Ka)$ . In general,  $\delta \ll Ka$ , which results in  $r \simeq -1$ : the bubble layer acts as a nearly perfect mirror.

From Eqs. (1), it is easy to show that the energy absorption of a layer of bubbles  $A = 1 - |r|^2 - |t|^2$  is given, at the minimum of transmission, by

$$A = \frac{2\delta Ka}{(\delta + Ka)^2}. \quad (2)$$

This expression indicates that an optimal absorption of  $A = 1/2$  can be achieved if  $\delta = Ka$ . The dissipative damping factor includes two sources of losses: thermal and viscous. For cavities in a soft-elastic medium, the viscous losses generally dominate and are given by  $\delta = 4\eta/(\rho a^2 \omega)$  [24], where  $\eta$  and  $\rho$  are the viscosity and density of the medium, respectively. One can thus define an optimal viscosity  $\eta^* = (\pi Z a^3)/(2d^2)$  for which the condition  $\delta = Ka$  is satisfied ( $Z$  is the acoustic impedance of the medium). Interestingly,  $\eta^*$  does not depend on frequency, which means that the critical coupling can be satisfied for a wide frequency range.

Figure 2a shows the model predictions (lines) for a meta-layer of  $8\mu\text{m}$ -radius bubbles separated by  $d = 50\mu\text{m}$  in a soft solid characterized by  $\mu = 1$  MPa,  $Z = 1$  MRay and a viscosity of  $\eta = \eta^* = 0.32$  Pa.s. Interestingly, the magnitudes of the reflection and transmission coefficients are close to 0.5 over an extended range of frequencies, not just at the resonance. This result comes from the fact that, as the resonator is over-damped,  $\delta$  and  $Ka$  govern its response, and since both vary as the inverse of the frequency, the equality  $Ka = \delta$  remains valid over a wide frequency range. Another consequence is that by changing the coupling between the bubbles, one can tune the values of  $|t|$  and  $|r|$ . This is illustrated in Fig. 2b where the magnitude of the transmission and reflection coefficients at 2 MHz (i.e., on the plateau) are reported as functions of the bubble spacing  $d$ . Thus, any value of  $|t|$  between 0 and 1 can be achieved by choosing the proper spacing. Concentrated meta-screens (small  $d$ ) efficiently block transmission, whereas dilute meta-screens (large  $d$ ) are transparent. With the optimal spacing ( $50\mu\text{m}$  here), the meta-screen absorbs half of the energy, radiating the other half equally forward and backward. Finite element simulations were performed with cylindrical cavities with the same volume ( $D = H = 14\mu\text{m}$ ), and good agreement was found (symbols in Fig. 2).

An interesting question is to determine whether the bubble meta-screen is an acoustic equivalent of plasmonic devices encountered in optics. Indeed, its geometry and

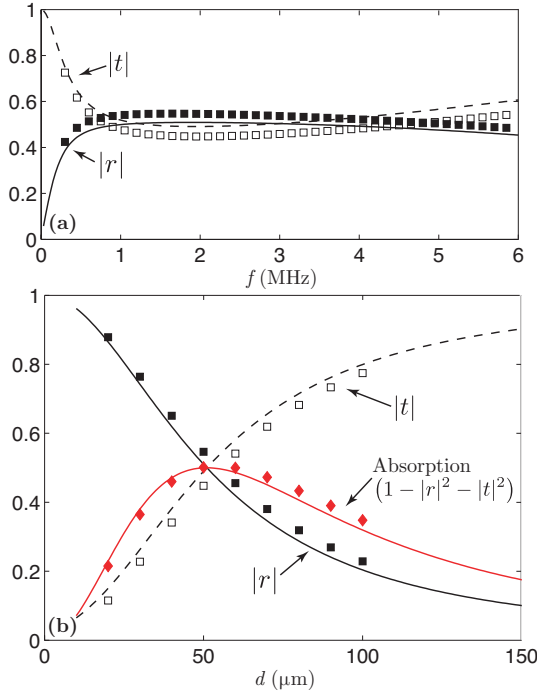


FIG. 2: (a) Transmission and reflection predicted by the model (lines) and finite element simulations (symbols) for  $\eta = \eta^*$ . (b)  $|t|$ ,  $|r|$  and absorption ( $A = 1 - |r|^2 - |t|^2$ ) at 2 MHz as a function of bubble spacing  $d$ .

properties are reminiscent of the perforated metal films that lead to extraordinary optical transmission, for example. However, in plasmonics, the surface plasmon-polariton resonators do not couple directly to the incident propagating wave. To obtain the coupling, one needs to convert the propagating wave into an evanescent wave, which is usually done by the structure of the surface that acts as a diffraction grating. In our case, bubbles are natural low frequency resonators that already couple efficiently with the incoming wave. The lattice of the screen does not play the role of a diffraction grating, it controls the coupling between the bubbles. Thus, the analogy with plasmonics is not complete. Nevertheless, it is interesting to note that the bubble meta-screens are perfectly described by the unified description proposed by Bliokh et al [25], which is based on the open-resonator concept. Indeed, the bubble layer is an acoustic open resonator, with leakage and dissipative  $Q$  factors given by  $Q_{\text{leak}}^{-1} = Ka$  and  $Q_{\text{diss}}^{-1} = \delta$ , respectively. Thus, it can be seen that the  $\delta = Ka$  prescription for maximizing absorption is analogous to the so-called critical coupling condition in waveguide theory [26, 27].

With a single meta-screen, not more than half of the incoming energy can be absorbed. However, there is another situation in which a much larger absorption can be

achieved: the case of a bubble meta-screen close to a reflector, as depicted in the inset of Fig. 3a. A simplified analysis of the total reflection by this structure considers only the interferences between the direct reflection from the bubble layer, and the multiple reflections between the layer and the reflector, which gives

$$r_{\text{tot}} = r + \frac{t^2 r' \exp(2ikh)}{1 - rr' \exp(2ikh)}, \quad (3)$$

where  $r'$  is the coefficient of the reflector and  $h$  the distance between the layer and the reflector. As shown on the right part of the inset of Fig. 3a, the direct reflection from the bubbles brings a  $\pi$  shift, whereas the reflection from steel has a zero phase. As a consequence, there is destructive interference between the two paths. If  $h$  is small compared with the wavelength, the phase induced by the propagation over this distance can be neglected and the total reflection reduces to  $r_{\text{tot}} = (r + r' + 2rr')/(1 - rr')$ , which is zero for  $r = -r'/(1 + 2r')$ . In the case of a perfect reflector ( $r' = 1$ ), one thus needs  $r = -1/3$ . Equation (1a) predicts that such a reflection coefficient is obtained for  $\delta = 2Ka$ , i.e.,  $\eta = 2\eta^*$ . Hence a bubble meta-screen with the proper bubble spacing should be able to transform a perfect reflector into a perfect absorber.

We have checked this prediction experimentally. Bubble meta-screens were fabricated by soft lithography [17]: cylindrical cavities of diameter  $D = 24 \mu\text{m}$  and height  $H = 13 \mu\text{m}$  ( $a = 11 \mu\text{m}$ ) were made in PDMS, whose acoustic impedance was  $Z = 1 \text{ MRay}$  and rheological properties estimated from experiments to be  $\mu = 0.6 + 0.7f \text{ MPa}$  ( $f$  in MHz) and  $\eta = 0.3 \text{ Pa.s}$  [28]. With such parameters, super-absorption was predicted for a bubble spacing of  $d = \sqrt{\pi Z a^2 / \eta} = 118 \mu\text{m}$ . Two samples of the same thickness ( $e = 230 \mu\text{m}$ ) were made with different spacing:  $d = 120 \mu\text{m}$  and  $d = 50 \mu\text{m}$ . Acoustic experiments were performed by placing the cavities directly on a steel block ( $h = H/2$ ) and measuring the reflection and transmission by standard ultrasonic techniques.

Figure 3 reports the parts of the energy that are reflected (a), transmitted (b) and absorbed (c). For the steel block alone (thick horizontal lines), 88% of the energy is reflected and 12% transmitted. As expected, when the block is covered by the  $d = 120 \mu\text{m}$  meta-screen, the reflectance is drastically reduced (black circles in Fig. 3a), especially between 1.4 and 2.9 MHz where less than 6% of the energy is reflected, with the measured reflectance dropping nearly to zero at 1.6 MHz. Note that the oscillations in the measured coefficient are due to the extra reflection because of the impedance mismatch between PDMS and water. The model can take this extra reflection into account, and it captures well the experimental data. The importance of choosing the optimal bubble spacing is illustrated by the low reflectance reduction brought by the non-optimized meta-screen (white circles). Interestingly, the meta-screens also reduce the transmission (Fig 3b), the  $d = 50 \mu\text{m}$  sample having

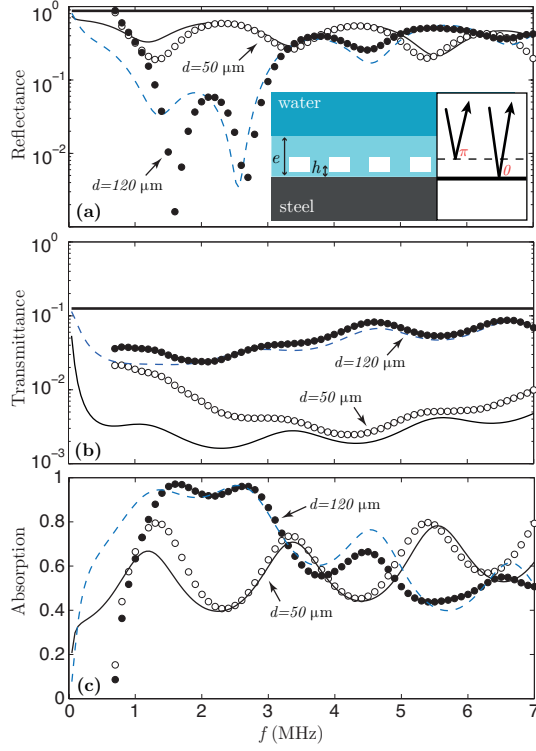


FIG. 3: Experimental measurements (symbols) of the reflectance (a), transmittance (b) and absorption (c) for two different meta-screens on a steel block. Solid thick horizontal lines are the values for the bare steel block. Solid and dashed lines show the prediction by the analytical model.

this time a smaller contribution. In terms of absorption (Fig. 3c), both meta-screens manage to dissipate a significant part of the energy over a broad frequency range. The optimized meta-screen shows very high absorption over the entire 1.4-2.9 MHz range, throughout which more than 91% of the incoming energy is dissipated, with a maximum absorbance of nearly unity at 1.6 MHz.

A further illustration of the performance of the meta-screen is given in Fig. 4, which reports the measurements of the reflection of ultrasonic waves using an array of transducers. One element, in the middle of the array, emits a signal at 2 MHz and all the elements record the reflected wave. With the bare steel block (left part of Fig. 4), the reflected wave can be clearly seen. But when the thin bubble meta-screen is put onto the steel block, the wave is nearly invisible (right part of Fig. 4). The virtue of this configuration is the demonstration that the super absorption is not limited to normal incidence: even tilted waves can be absorbed. This is further demonstrated by the insets of Fig. 4 in which the 40 first elements record the wave emitted by the last element of the array (here the angle of incidence is of the order of  $10^\circ$ ).

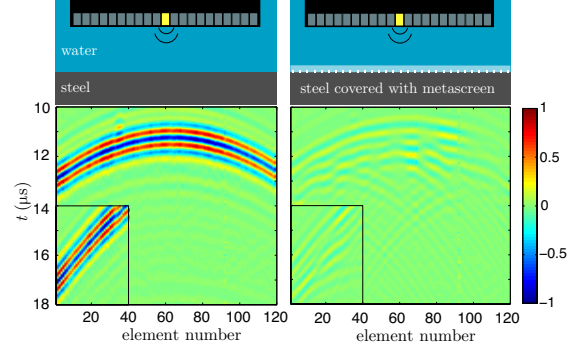


FIG. 4: Pressure wave measured on each element of an array of transducers when a 2 MHz-signal sent by an element in the middle is reflected either on the bare steel block (left) or on the same block covered with the optimized bubble meta-screen (right). All the amplitudes are normalized by the maximum amplitude recorded in the bare block case. In the insets, the reflection of a tilted wave is recorded by emitting with the last element on the right.

A striking application of bubble meta-screens is to make immersed objects invisible to sonar. In fact, many submarines are already equipped with anechoic coatings made of perforated soft solids. However, the optimization of such coatings is still an issue, which is usually tackled by numerical simulations. In the literature, the best reflectance reduction over the 8-22 kHz frequency range (relevant for sonar applications) was calculated at 22 dB by Ivansson for a 12 mm thick rubber with bi-disperse superellipsoidal inclusions [12]. As shown in the supplemental material, our analytical model predicts that a 35 dB reduction can be obtained with a 4 mm thick meta-screen [30], showing the advantage of our experimentally-validated fully analytic approach.

In conclusion, we have shown how acoustic super-absorption can be achieved using a meta-screen based on a periodic arrangement of bubbles embedded in a soft elastic matrix. Our analytical description provides a thorough understanding of the phenomenon and allows meta-screens to be designed with fully tunable and optimized absorption properties over wide frequency ranges. This approach differs from methods based on iterative optimization, e.g., with genetic algorithms, and has the advantage of clearly identifying how the key material parameters (in our case, bubble size and separation, as well as matrix viscosity) should be adjusted to achieve optimized performance. Our approach has the merit of fully incorporating, and greatly benefiting from, the strong coupling between the local resonators, a point which is often neglected in metamaterials applications. This should therefore motivate the development of analogous methods, not only in acoustics but in optics, microwaves and plasmonics as well.

One of the authors thanks B. Dubus for fruitful discussions. This work was supported by LABEX WIFI (Laboratory of Excellence ANR-10-LABX-24) within the French Program “Investments for the Future” under reference ANR-10-IDEX-0001-02 PSL\*. Support from the Discovery Grants Program of the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada is gratefully acknowledged.

- 
- [1] J. B. Pendry, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3966 (2000)
  - [2] R. A. Shelby, D. R. Smith, S. Schultz, *Science* **292**, 77 (2001)
  - [3] J. Valentine, S. Zhang, T. Zentgraf, E. Ulin-Avila, D. A. Genov, G. Bartal, and Xiang Zhang, *Nature* **455**, 376 (2008)
  - [4] S. Zhang, L. Yin, N. Fang, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 194301 (2009).
  - [5] D. Schurig, J. J. Mock, B. J. Justice, S. A. Cummer, J. B. Pendry, A. F. Starr, and D. R. Smith, *Science* **314**, 977 (2006)
  - [6] H. Chen and C. T. Chan, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 183518 (2007)
  - [7] D. Torrent and J. Sánchez-Dehesa, *New J. Phys.* **10**, 023004 (2008)
  - [8] S. A. Cummer, B.-I. Popa, D. Schurig, D. R. Smith, J. Pendry, M. Rahm, and A. Starr, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 024301 (2008)
  - [9] G. Lerosey, J. de Rosny, A. Tourin, M. Fink, *Science* **315**, 1120 (2007)
  - [10] F. Lemoult, M. Fink, G. Lerosey, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 064301 (2011)
  - [11] N. I. Landy, S. Sajuyigbe, J. J. Mock, D. R. Smith, and W. J. Padilla, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 207402 (2008)
  - [12] S. M. Ivansson, *J. Acoust. Soc. Am.* **124**, 1974 (2008)
  - [13] A. Moreau, C. Ciraci, J. J. Mock, R. T. Hill, Q. Wang, B. J. Wiley, A. Chilkoti, and D. R. Smith, *Nature* **492**, 86-89 (2012)
  - [14] J. Mei, G. Ma, M. Yang, W. Wen, and P. Sheng, *Nature Communications* **3**, 756 (2012)
  - [15] G. Ma, M. Yang, S. Xiao, Z. Yang, and P. Sheng, *Nature Materials* **13**, 873 (2014)
  - [16] J. Christensen, V. Romero-Garcia, R. Pico, A. Cebrecos, F. J. Garcia de Abajo, N. A. Mortensen, M. Willatzen, and V. J. Sanchez-Morcillo, *Scientific Reports*, **4**, 4674 (2014)
  - [17] V. Leroy, A. Bretagne, M. Fink, H. Willaime, P. Tabeling, A. Tourin, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 171904 (2009)
  - [18] E. Meyer, K. Brendel, K. Tamm, *J. Acoust. Soc. Am.* **30**, 1116 (1958)
  - [19] D. C. Calvo, A. L. Thangawng, and C. N. Layman, *J. Acoust. Soc. Am.*, **132**, EL1 (2012)
  - [20] A.-C. Hladky-Henion and J.-N. Decarpigny, *J. Acoust. Soc. Am.* **90**, 3356 (1991)
  - [21] S. M. Ivansson, *J. Acoust. Soc. Am.* **119**, 3558 (2006)
  - [22] V. Leroy, A. Strybulevych, M. G. Scanlon, J. H. Page, *Eur. Phys. J. E* **29**, 123 (2009)
  - [23] C. Feuillade, *J. Acoust. Soc. Am.* **98**, 1178 (1995)
  - [24] A. Prosperetti, *J. Acoust. Soc. Am.* **61**, 17 (1977)
  - [25] K. Y. Bliokh, Y. P. Bliokh, V. Freilikher, S. Savel'ev, F. Nori, *Review of Modern Physics* **80**, 1201 (2008)
  - [26] Y. Xu, Y. Li, R. K. Lee, and A. Yariv, *Phys. Rev. E* **62**, 7389 (2000)
  - [27] C. Wu, B. Neuner, G. Shvets, J. John, A. Milder, B. Zollars, and S. Savoy, *Phys. Rev. B* **84**, 075102 (2011)
  - [28] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, and M. G. Scanlon, *Phys. Rev. E* **83**, 046605 (2011)
  - [29] P. Y. Longin, C. Verdier, M. Piau *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **76**, 213 (1998)
  - [30] See Supplemental Material, which includes Ref [29], for details on the optimization.

# Super-Absorption of Acoustic Waves with Bubble Meta-Screens: Supplemental Material

Valentin Leroy,<sup>1</sup> Anatoliy Strybulevych,<sup>2</sup> Maxime Lanoy,<sup>3,1</sup> Fabrice Lemoult,<sup>2,3</sup> Arnaud Tourin,<sup>3</sup> and John H Page<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Laboratoire Matière et Systèmes Complexes, Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), Paris, France*

<sup>2</sup>*Department of Physics and Astronomy, University of Manitoba, Winnipeg, Canada*

<sup>3</sup>*ESPCI Paris Tech, PSL Research University, CNRS, Institut Langevin, F-75005 Paris*

(Dated: October 6, 2014)

We show that having a fully analytic expression, and a better physical insight into the problem, allows us to design meta-screens with better performance than has been predicted previously. The first step is to tune the resonance to the desired frequency.

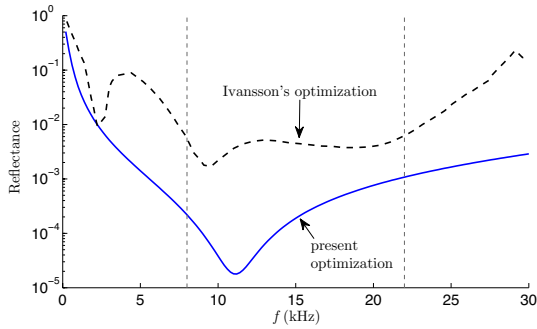


FIG. S1: Reflectance as a function of frequency for the optimal configuration predicted by Ivansson (dashed line, extracted from Ref. [S3] for his case b, which is shown by the solid line in his Fig. 8), and for our optimization (solid line), guided by the analytic model. In the first case (Ivansson's optimization), the reflectance reduction is 22 dB over the 8–22 kHz range with a 12 mm structure. In the second case (our optimization), a 35 dB reduction is achieved with a 4 mm meta-screen.

Two main parameters affect the resonance frequency: the size of the bubbles and the shear modulus of the solid. As we want the bubbles to be as small as possible (to reduce the thickness of the meta-screen), a low value of the shear modulus is preferable. Let us take for instance  $\mu = 0.2$  MPa, which makes a very soft material, but still hard enough for centimeter-thick slabs not to lose their shape under their own weight. With such a

value of the shear modulus, bubbles of 1 mm radius resonate at 6 kHz. This is below our range of interest for sonar applications, but we know that coupling between bubbles tends to increase the resonance frequency. To be sure there is enough material around each bubble to efficiently dissipate the energy, let us make the thickness of the solid twice the diameter of the bubbles:  $e = 4$  mm. The next step is to choose the viscosity of the solid. Obviously, the higher the better, because high damping makes the super-absorption broader in frequency. We pick a value of  $\eta = 100$  Pa.s, which is very high (10 times the viscosity of honey) but easily reached by silicone oils [S1]. We then choose  $d = 7$  mm, following the super-absorption prescription  $\eta = 2\eta^*$ . Note that we assume that the solid is impedance matched with water, to avoid reflection on the front face of the meta-screen [S2]. Figure S1 shows that our optimization beats the best performance prediction in the literature by Ivansson [S3]. It appears that, in his simulations, Ivansson did not explore high enough values of viscosity to reach  $\eta^*$ . Note, however, that the performance of the meta-screen is found to be quite sensitive to the exact bubble spacing: the reflectance reduction drops to 32 dB for  $d = 7.2$  mm.

[S1] P. Y. Longin, C. Verdier, M. Piau *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **76**, 213 (1998)

[S2] Note that it should be possible in practice to achieve perfect impedance matching for longitudinal waves by adding appropriate submicron filler particles to the soft solid, so as to tailor its acoustic effective medium properties.

[S3] S. M. Ivansson, *J. Acoust. Soc. Am.* **124**, 1974 (2008)

### 3.4 Perspectives

Le système simple du plan de bulles s’est finalement avéré être plus qu’un “modèle jouet” pour mieux comprendre les interactions acoustiques entre bulles. C’est un objet acoustique d’intérêt pratique, et finalement assez facile à fabriquer. Ses performances acoustiques à basses fréquences en font un candidat intéressant pour des applications d’absorption des ondes acoustiques. Le dernier article présenté a une application pratique directe en acoustique sous-marine, par exemple. En fait, des systèmes similaires sont déjà utilisés depuis la seconde guerre mondiale pour rendre les sous-marins plus difficiles à détecter par les sonars. Ces revêtements anéchoïques, connus sous le nom de tuiles d’Alberich, ont déjà fait l’objet d’études expérimentales et numériques poussées. Mais le lien entre viscosité et pas du réseau n’avait jamais été établi auparavant, et notre approche analytique pourrait s’avérer utile pour guider le processus d’optimisation.

L’acoustique aérienne est également un champ d’application possible pour les plans de bulles. Nous avons par exemple montré qu’un milieu bulleux permettait d’améliorer le blocage des ondes sonores basses fréquences [43], qui sont un casse-tête pour les applications d’isolation phonique.

Le plan de bulles continue d’être au centre de la collaboration entre les 3 laboratoires, en France et au Canada. Plusieurs travaux d’amélioration du modèle analytique sont actuellement en cours :

- On cherche à inclure le terme de diffusion dipolaire, afin d’aller jusqu’à des fractions surfaciques plus grandes. En effet, le modèle s’est montré performant tant que le rapport entre le pas du réseau et le rayon des bulles restaient supérieur à cinq ( $d/a > 5$ ), mais pour des concentrations plus fortes l’accord n’est pas bon, comme le montre la [figure 6](#) de l’article 4. Une piste est de regarder le rôle des corrélations de position sur la réponse dipolaire des bulles. En cas de plan désordonné, on ne s’attend pas à un effet de la réponse dipolaire (voir les équations (A.18) de l’annexe A) parce que, pour des bulles, elle reste négligeable par rapport à la réponse monopolaire. Mais pour une répartition ordonnée des bulles dans le plan, on soupçonne que le gradient de champ ressenti par une bulle, qui pilote la réponse dipolaire, puisse s’écarter notablement du cas désordonné.
- Aller au delà de l’incidence normale est également une amélioration importante pour envisager des applications pratiques. Les premières simulations et expériences (voir la [figure 4](#) de l’article 7) indiquent que les performances du plan de bulles ne se limitent pas à l’incidence normale, même si l’angle d’incidence a bien un effet.
- En lien avec le chapitre précédent et le problème du rôle de la corrélation dans la pâte à pain, nous comptons utiliser le plan de bulles pour regarder plus finement les effets d’une corrélation polydisperse. On veut calculer, par exemple, la fonction de réponse d’un plan qui contiendrait de grosses bulles isolées et de petites bulles en amas, pour voir si elle change significativement de celle d’un plan désordonné.
- Enfin, le plan de bulles est un système idéal, toujours par sa structure simple, pour étudier les effets non linéaires. Les bulles sont en effet connues pour être des sources non



linéaires efficaces en acoustique. Nous avons entrepris, dans le cadre du projet ANR DiAMAN, d'étudier comment les effets non linéaires intervenaient en régime de forte diffusion multiple. Les travaux, dans le cadre de la thèse d'Olivier Lombard, ont débuté sur la génération d'harmonique par un plan de bulles.

## Chapitre 4

# Mousses liquides

Ce dernier chapitre propose un saut dans l'échelle des concentrations pour explorer les propriétés acoustiques d'une assemblée concentrée de bulles : une mousse liquide. Les bulles étant des objets déformables, on peut les empiler au delà de la limite d'empilement compact. Cela signifie que l'on peut atteindre des fractions volumiques de gaz supérieures à 64%.<sup>1</sup> À ces concentrations, les bulles perdent leur géométrie sphérique et commencent à se facetter, comme le montre la figure 4.1. Le liquide se répartit autour de ces bulles polyédriques, donnant naissance à 3 éléments liquides de géométries différentes : les faces du polyèdre forment les films, les arêtes sont appelées bords de Plateau, et les sommets sont les vertex. Bien qu'ils comptent pour une part souvent négligeable du volume total, les films sont un élément essentiel d'une mousse liquide. C'est une différence importante avec les mousses solides : si les arêtes sont solides, la structure de la mousse peut se maintenir en l'absence de films. On parle alors de mousse (solide) à cellules ouvertes. Pour une mousse liquide, c'est impossible. Quand un film disparaît, les bulles qu'il séparait fusionnent et l'ensemble du liquide se réorganise autour d'une nouvelle bulle plus grande. L'existence d'une mousse liquide est donc conditionnée par la possibilité d'avoir des films stables. Ainsi, on ne peut pas faire une mousse avec de l'eau pure, puisqu'un film d'eau n'est pas stable. Pour former une mousse, il faut ajouter des objets qui viennent peupler les interfaces gaz/liquide, stabilisant ainsi les films. Ces objets sont souvent des molécules amphiphiles, c'est-à-dire qui contiennent une partie hydrophile et une partie hydrophobe, ce qui leur fait préférer les interfaces.

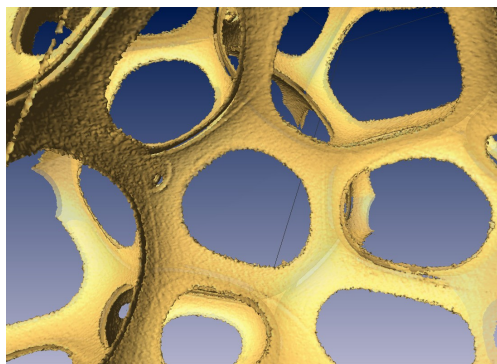


FIGURE 4.1 – La structure d'une mousse liquide révélée par tomographie aux rayons X. Les films, trop fins pour être visualisés, occupent les faces des bulles (cliché R. Mokso, tiré de [46]).

Les mousses liquides ont fait l'objet d'études approfondies de la part des physiciens et

---

1. C'est la limite pour un ensemble désordonné de sphères de même rayon ; en ordonnant l'empilement, on peut monter jusqu'à 74%.

des physico-chimistes, pour comprendre notamment leur stabilité et leur structure, ainsi que leur comportement mécanique et rhéologique. En revanche, contrairement aux mousses solides, elles ont été assez peu étudiées pour leurs propriétés acoustiques. Il est intéressant de noter que parmi tous les systèmes diphasiques que l'on peut rencontrer, les mousses liquides sont celles dont l'acoustique est la moins bien connue. Émulsions, milieux bulleux, milieux granulaires, milieux poreux, suspensions de particules, tous ces milieux ont des propriétés acoustiques bien établies, et ont même parfois vu des techniques acoustiques se développer pour les caractériser. Les mousses liquides, malgré leur présence dans nombre de secteurs d'activité (en agro-alimentaire, cosmétique, industries minière et pétrolière), sont restées les parents pauvres de l'acoustique. L'objectif du projet SAMOUSSE, en partenariat avec deux autres laboratoires de recherche et une PME, était justement de combler ce vide.

### Quelques résultats expérimentaux sur l'acoustique des mousses

Bien que réduite, la bibliographie sur l'acoustique des mousses<sup>2</sup> n'est pas nulle. On présente ici une synthèse des travaux expérimentaux existants sur le sujet.

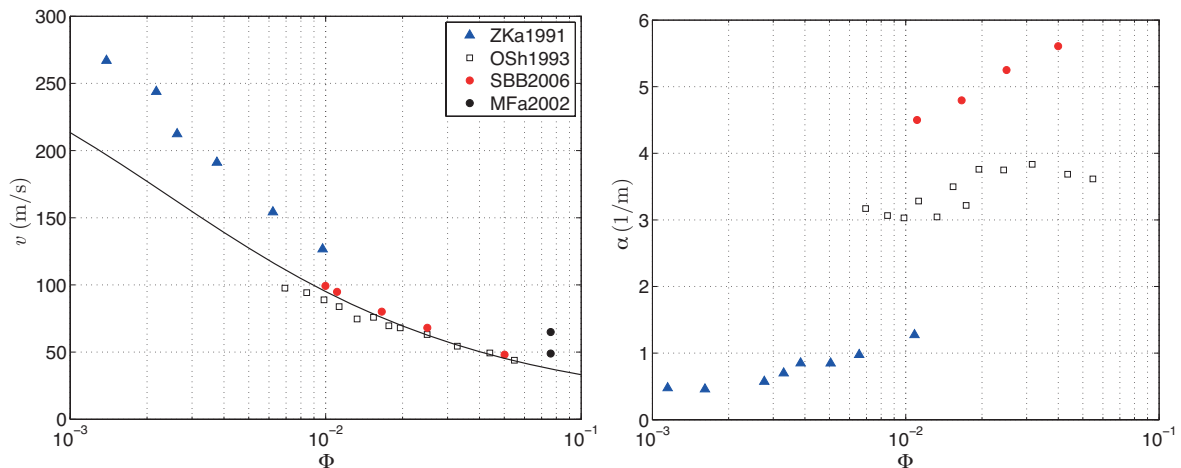


FIGURE 4.2 – Vitesse de phase (gauche) et atténuation (droite) du son mesurées dans des mousses, en fonction de la fraction volumique de liquide. Les points sont tirés de quatre publications différentes (voir table 4.1); la courbe de vitesse est celle donnée par une loi de Wood (pour des transformations isothermes du gaz). Pour MFa2002, les deux points sont à même fraction de liquide mais correspondent à des tailles moyennes de bulles différentes (temps de vieillissement différents).

La figure 4.2 présente quelques résultats expérimentaux de mesures de vitesse et d'atténuation du son dans une mousse. Comme pour les milieux bulleux, la vitesse effective du son est faible dans une mousse. On constate que le modèle de Wood capture relativement bien les mesures pour 2 des séries de données, mais s'en écarte significativement pour les deux autres. Pour l'atténuation, le premier constat est qu'elle est très grande dans la mousse puisqu'il faut comparer l'ordre de grandeur de  $1 \text{ m}^{-1}$  de la figure 4.2 à l'atténuation à 1 kHz dans l'eau,  $10^{-8} \text{ m}^{-1}$ , et dans l'air,  $10^{-4} \text{ m}^{-1}$  (à  $25^\circ\text{C}$  et 50% d'humidité). Les trois séries

2. Par souci de légèreté, on utilisera “mousse” pour “mousse liquide” dans la suite.

de mesures présentées ne se superposent pas du tout sur la même courbe, un signe clair que la fraction volumique de liquide  $\Phi$ <sup>3</sup> n'est pas le seul paramètre à prendre en compte. Or la plupart des études expérimentales publiées ne donne que peu d'information sur la composition et la structure exactes des échantillons de mousse utilisés.<sup>4</sup> La table 4.1 donne, dans le cas des expériences de la figure 4.2, quelques paramètres tels que le type de tensio-actif utilisé, la taille moyenne des bulles ainsi que la fréquence à laquelle l'expérience a été conduite. Notons que, dans la plupart des articles, on sent que le rayon moyen n'est donné qu'à titre indicatif, sans avoir fait l'objet d'un soin particulier pour déterminer la véritable distribution en tailles des bulles de la mousse, une donnée qui paraît pourtant indispensable pour une comparaison sérieuse à un modèle.

TABLE 4.1 – Quelques paramètres pour les mousses de la figure 4.2. Pour la Gillette, on donne les rayons pour les deux points de mesure, la vitesse la plus élevée correspondant au plus petit rayon.

Ref	Mousse	rayon moyen	Fréquence
ZKa1991 [48]	Air+eau+sulfone (3%)	1 mm	1 kHz
OSh1993 [49]	air+eau+ ?	70-125 $\mu\text{m}$	1 kHz
SBB2006 [50]	Air+eau+expandol (6%)	100-200 $\mu\text{m}$	1 kHz
MFa2002 [51]	Gillette	15 $\mu\text{m}$ et 50 $\mu\text{m}$	5 kHz

Plutôt qu'une liste détaillée des articles publiés sur l'acoustique des mousses, on préfère ici brosser un tableau de ce qu'il ressort de leur lecture, sous la forme de quatre questions qui sont encore ouvertes sur le sujet.

**Question 1.** Pourquoi la vitesse du son dans une mousse est-elle parfois de l'ordre de celle prévue par Wood, et parfois plus proche de celle dans l'air ?

On a vu par exemple que les données de Zamashchikov et Kakutkina (triangles bleus de la figure 4.2) s'écartaient du modèle de Wood. Les auteurs émettent l'hypothèse que toute l'eau de la mousse ne participe pas au mouvement lors de la propagation du son, ce qui donnerait une masse volumique plus faible, et donc une vitesse plus élevée. Ils notent en particulier qu'une mousse “*contains highly mobile, highly elastic liquid films, which can participate in sound transmission in varying degrees.*” [48]. On retrouvera cette idée du rôle particulier des films dans le modèle de Kann [52], ainsi que dans le modèle que nous proposons dans la partie 4.3.

Dans les données de Mujica et Fauve [51] sur la mousse à raser (ronds noirs de la figure 4.2), la vitesse mesurée est également bien au dessus de celle de Wood. On constate que cette vitesse

3. Attention, avec le passage du milieu bulleux à la mousse, la notation  $\Phi$  a changé de signification. Le lecteur voudra bien m'excuser pour la fluctuation de notation.

4. Une publication, signalée par R. Höhler, fait exception : Gardiner *et al.* [47]. On y trouve des précisions sur la physico-chimie (un mélange de tensio-actifs utilisé pour les mousses d'extincteur) et sur le rayon moyen des bulles ( $\sim 140 \mu\text{m}$  en début de vie de la mousse). Les mesures de vitesse, à 3,6 kHz, sont bien décrites par le modèle de Wood. En revanche, il n'y a pas de mesures d'atténuation.

décroît avec le temps. Les auteurs proposent une interprétation en terme d'élasticité interfaciale, invoquant un module élastique supplémentaire dû aux films de la mousse. Cependant, la loi d'élasticité invoquée, supposée être inversement proportionnelle à l'épaisseur des films, ne paraît pas raisonnable. On verra en outre que des mousses fabriquées à partir de tensio-actifs connus pour donner une très forte élasticité de surface ne présentent pas d'anomalie du point de vue de la vitesse du son (voir page 109).

**Question 2.** L'atténuation du son dans la mousse est-elle d'origine thermique ou visqueuse ?

Mujica et Fauve utilisent un argument d'échelle pour montrer que la dissipation thermique semble être à l'origine de l'atténuation mesurée dans leur mousse. Ils trouvent en effet que l'atténuation adimensionnée par la longueur d'onde effective varie linéairement en  $R^2\omega$ , où  $R$  est le rayon moyen et  $\omega$  la pulsation à laquelle est faite la mesure. Ce comportement est effectivement compatible avec l'idée que l'atténuation est pilotée par le rapport entre le rayon des bulles et une épaisseur de pénétration thermique. Une publication très récente [53] conclut elle-aussi au rôle dominant de la dissipation thermique. Pourtant, un article de Orenbakh et Shushkov [54] montre qu'en préparant une mousse avec deux gaz de propriétés thermiques très différentes (de l'air et de l'hélium), on mesure une atténuation très proche, ce qui indique que les effets thermiques n'expliquent pas tout.

**Question 3.** Y a-t-il un rôle de la physico-chimie ?

La composition physico-chimique est un élément clef pour la stabilité d'une mousse. On sait qu'elle affecte aussi la dynamique du drainage, par exemple, qui ne sera pas la même selon que les interfaces de la mousse sont rigides ou mobiles. On peut dès lors se poser la question de son rôle sur les propriétés acoustiques. Est-ce que la différence d'atténuation mesurée par OSh1993 et SBB2006 (voir figure 4.2) pour des mousses avec sensiblement la même taille de bulle, et à la même fréquence, pourrait venir d'une différence de physico-chimie ? L'ajout de particules solides dans la mousse a également un effet non clairement identifié : cela augmente [55] ou diminue [56] l'atténuation effective du son.

**Question 4.** La résonance de Minnaert existe-t-elle dans les mousses liquides ?

On trouve la trace d'une résonance de type Minnaert dans trois publications. Dans Ding *et al.* [57], le spectre du signal émis par une mousse lors de l'éclatement d'une bulle correspond bien aux fréquences de Minnaert calculées à partir des rayons des bulles en présence.<sup>5</sup> Dans Bretagne *et al.* [43], la réflexion du son par un radeau de bulles fait apparaître un minimum pour une fréquence proche de la fréquence de Minnaert des bulles. Dans Ben Salem *et al.* [59] enfin, le signal transmis à travers une mousse passe par un minimum pour un rayon moyen des bulles qui correspond à la fréquence de Minnaert.

Ces observations sont troublantes parce qu'on n'attend pas de résonance individuelle des bulles dans un milieu aussi concentré qu'une mousse. A minima, il faudrait corriger l'expression de la fréquence de Minnaert pour tenir compte du fait que la bulle n'oscille plus dans de l'eau,

---

5. À noter que cet article rapporte également l'observation d'un précurseur acoustique avant l'éclatement d'une bulle, qui a récemment été identifié comme étant un artefact d'instrumentation [58].

mais dans un milieu de densité plus faible. Cela donnerait quelque chose comme  $\omega_0/\sqrt{\Phi}$  (voir l'équation (1.14)) où  $\Phi$  désigne la fraction volumique de liquide. Pour  $\Phi = 5\%$ , on attendrait alors plus d'un facteur 4 sur la fréquence de résonance, ce qui ne correspond pas aux trois observations rapportées précédemment.

## Quelques modèles pour l'acoustique des mousses

Nous discutons quatre modèles que l'on peut être tenté d'appliquer au cas des mousses liquides.

**Waterman et Truell** a déjà été abondamment utilisé dans les chapitres précédents. Il s'est avéré performant pour les milieux bulleux à condition que les corrélations de position soient négligeables. C'est une limitation sévère pour une mousse puisque, la concentration en bulles étant extrême, les corrélations ne sont certainement pas négligeables. On s'attend donc à des déviations significatives à WT dans les mousses. Mais à très basses fréquences, dans le régime de Wood, quand l'effet des corrélations est moins fort, WT pourrait donner un ordre de grandeur pertinent. Après tout, on observe bien, dans certains cas, une vitesse de Wood dans les mousses. Une question est de savoir si l'atténuation est également bien décrite par WT dans ce régime. Étudions donc l'hypothèse d'une mousse se comportant comme un milieu bulleux concentré.

En négligeant la compressibilité du liquide (par rapport à celle du gaz) et la densité du gaz (par rapport à celle du liquide), on obtient un nombre d'onde effectif donné par :

$$\left(\frac{k}{\omega}\right)^2 = \frac{\rho\Phi(1-\Phi)}{\kappa P_0 + \frac{2\sigma}{R_0}(\kappa - 1/3) - \omega^2 \rho R_0^2/3 - 4i\eta\omega/3}, \quad (4.1)$$

où  $\eta$  désigne la viscosité du liquide,  $\sigma$  sa tension de surface, et  $\kappa$  l'exposant polytropique du gaz, donné par (B.34). Cette formule prévoit une résonance pour la fréquence de Minnaert, mais on ne la considèrera que pour des fréquences basses, pour lesquelles  $\omega^2 \rho R_0^2/3 \ll \kappa P_0$ . On retrouve alors l'expression de Wood, avec une compressibilité du gaz qui tient compte de la taille des bulles puisque le terme  $\kappa P_0$  considère les échanges thermiques entre le gaz et l'eau. En outre, ce terme est complexe et sa partie imaginaire donnera la contribution des effets thermiques à l'atténuation. On trouve d'ailleurs que pour un liquide ayant une viscosité proche de celle de l'eau, ce sont les effets thermiques qui dominent largement l'atténuation du son.

**Goldfarb, Shreiber et Vafina (GSV)** ont développé un modèle tenant compte de la microstructure de la mousse [60, 61]. Malheureusement, les équations de la relation de dispersion sont légèrement différentes dans les deux articles où le modèle apparaît explicitement. On a pris la forme qui nous paraissait la plus vraisemblable (équation (16) dans [61]), et on l'a réécrite de manière à pouvoir la comparer facilement à WT :

$$\left(\frac{k}{\omega}\right)^2 = \frac{(\rho - \rho_g)\Phi + (1 - \Phi)\rho_g C}{B\kappa \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R_0}\right) - 4\sigma/(3R_0) - \omega^2 \rho b R_0/3 - 4i\eta\omega/3 \left(1 + \frac{\Phi R_0^2}{4K_f}\right)}. \quad (4.2)$$

avec

$$C = \frac{1 + (\gamma - 1)/B}{1 + 3 \frac{x \coth(x) - 1}{x^2} (\gamma - 1)/B}, \quad (4.3a)$$

$$B = \left[ 1 + 3 \frac{x \coth(x) - 1}{x^2} y_\ell \coth(y_\ell) \frac{\rho_g C_{pg}}{\rho_\ell C_{p\ell} \Phi} \right] \quad (4.3b)$$

$$K_f = 3.5 \times 10^{-3} R_0^2 \Phi^2 \quad (4.3c)$$

$$x = \sqrt{i\omega R_0^2/D_g} \quad \text{et} \quad y_\ell = \sqrt{i\omega b^2/D_\ell} \quad (4.3d)$$

$$b = \Phi R_0/3 \quad (4.3e)$$

$$C_{pg}/C_{p\ell} \simeq 0.24 \quad \text{et} \quad D_\ell \simeq 1.4 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$$

Par rapport à WT, il y a quatre différences notables :

- Au numérateur, un terme en  $\rho_g$  qui dépend des échanges thermiques entre gaz et liquide (via  $C$ ) et dont la signification n'est pas très claire. Il est cependant d'amplitude négligeable par rapport à l'autre terme du numérateur.
- L'exposant polytropique est multiplié par un facteur  $B$  qui tient compte de l'épaisseur finie de la membrane liquide autour des bulles (évaluée par  $b$ ). Dans WT, on a en effet supposé que l'eau restait à température constante durant les échanges thermiques avec le gaz. GSV lève cette hypothèse, qui peut paraître difficile à justifier quand on passe d'une étendue d'eau infinie à une fine pellicule. Cela dit, en pratique, ce coefficient  $B$  est extrêmement proche de 1, parce que  $(\rho_g C_{pg})/(\rho_\ell C_{p\ell})$  est très petit ( $\simeq 3 \times 10^{-4}$  pour un couple air/eau).
- Le terme d'inertie (en  $\omega^2 \rho$ ) fait intervenir  $b R_0$  au lieu de  $R_0^2$ . Cela permet de tenir compte de la quantité limitée d'eau autour de la bulle, comme évoquée précédemment. Pour les résultats basses fréquences, dans le régime de Wood, on ne tient pas compte de ce terme.
- La viscosité est grandement modifiée. GSV ajoute un terme pour tenir compte du fait que les oscillations des bulles engendrent des écoulements dans les bords de Plateau. Ils invoquent une loi de Darcy et introduisent donc une conductivité hydraulique  $K_f$ , dont l'expression est effectivement en accord avec certaines mesures de drainage dans les mousses [62]. Ce qui est intéressant, c'est qu'avec cette modification de la viscosité effective, GSV prévoit une contribution non négligeable de la viscosité à l'atténuation du son.

**Biot.** La théorie de Biot et ses nombreux avatars permettent de décrire la propagation des ondes acoustiques dans un milieu constitué de deux phases continues. Le cas le plus fréquent comprend une phase solide et une phase fluide couplées par des forces visqueuses. On peut penser à une mousse solide remplie d'air. Dans la plupart des cas, quand le fluide est de l'air, la phase solide est en fait considérée comme indéformable et on utilise le modèle semi-phénoménologique de Johnson-Champoux-Allard (JCA) [63]. Grossièrement, cela revient à dire que l'onde se propage à travers l'air du poreux, en frottant et en échangeant de la chaleur sur les parois des pores. Dans ce genre de configuration, la vitesse effective est généralement assez proche de la vitesse dans l'air, mais l'atténuation est très importante parce que la surface



d'échange offerte par la mousse est considérable. C'est ce qui fait le succès des matériaux poreux pour l'atténuation acoustique. Une des limites du modèle est qu'il n'établit pas de lien clair entre la microstructure du milieu et les 5 paramètres nécessaires à son évaluation. Toutefois, des travaux récents tendent dans cette direction, et essaient de déterminer les paramètres du modèle à partir d'une maille élémentaire représentative du milieu [64, 65].

Pour les mousses liquides, la condition de continuité de la phase gazeuse n'est pas remplie puisque les bulles sont fermées par des films. On est dans le cas d'une mousse à cellule fermée, mal décrite par un modèle de type Biot.

**Kann** est le seul à proposer un modèle qui prenne explicitement en compte la présence des films dans la mousse.<sup>6</sup> Celle-ci est décrite comme une succession de films d'épaisseur  $\delta$ , comme illustré sur la figure 4.3. Kann prédit alors une vitesse effective [52]

$$v = \frac{v_g}{1 + \rho_\ell \delta / (\rho_g d)}, \quad (4.4)$$

où  $v_g$  est la vitesse du son dans le gaz,  $\rho_\ell$  la masse volumique du liquide et  $\rho_g$  celle du gaz. On trouve donc une vitesse proche de celle de l'air, ce qui permet de rendre compte de certaines mesures expérimentales. Kann propose aussi une source d'atténuation venant des films dont le mécanisme, pas très clair, ne sera pas discuté ici.

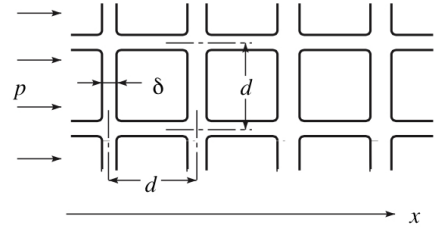


FIGURE 4.3 – Le modèle de “mousse cubique” de Kann (schéma issu de [66]).

6. Merci à Julien Bonaventure d'avoir déniché cette référence durant son stage de L3.

## 4.1 Régime basses fréquences [Article 8]

L'article 8, paru dans *The European Physical Journal E* en 2013 [67], propose des mesures à basses fréquences sur des mousses bien caractérisées. Cela signifie que nous nous sommes efforcés de travailler avec une composition physico-chimique connue et de déterminer la structure de la mousse le plus finement possible, en mesurant la fraction volumique de liquide et, surtout la distribution en taille des bulles. Pour l'aspect acoustique, nous avons choisi de travailler avec un tube d'impédance, un dispositif très souvent employé pour les mesures sur les matériaux poreux. Aussi surprenant que cela puisse paraître, c'était la première fois qu'un tube d'impédance était utilisé sur une mousse liquide. Pourtant, la seule précaution à prendre fut de maintenir le tube à la verticale, porte-échantillon vers le bas pour éviter que la mousse ne coule. À part ça, le remplissage s'est avéré facile et les mesures tout à fait répétables.



FIGURE 4.4 – Une mousse humique ( $\Phi = 20\%$ ) dans le porte-échantillon d'un tube d'impédance (cliché W. Drenckhan).

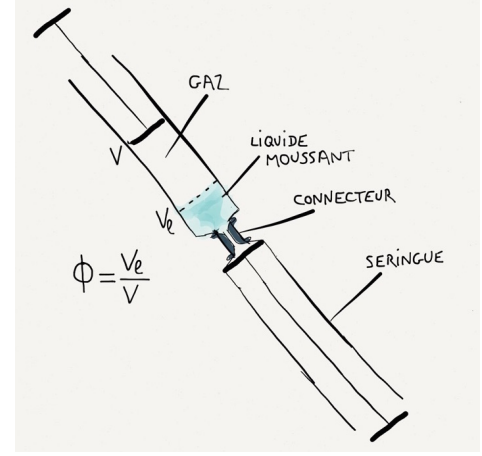
Fabriquer des mousses qui soient stables suffisamment longtemps pour permettre des mesures acoustiques n'est pas compliqué, à condition de bénéficier de tout le savoir-faire accumulé par la communauté des “mousseux” ! La technique dite “deux seringues”, présentée dans la figure 4.5, permet de créer une mousse de fraction volumique de liquide contrôlée, entre 3 et 30% si on utilise un bon agent moussant. La mesure de taille de bulles se fait en déposant une petite quantité de mousse sur un bain et en analysant les images ainsi obtenues avec une astuce détaillée en annexe de l'article 8 (voir également la référence [68]). Il est très pratique d'utiliser de l'air avec des traces de perfluorohexane ( $C_6F_{14}$ ) afin de ralentir le mûrissement de la mousse.<sup>7</sup>

Le tube d'impédance permet de mesurer avec précision le coefficient de réflexion entre l'air et l'échantillon placé dans le tube. En règle générale, cette information ne permet pas de caractériser complètement l'échantillon puisque ce coefficient dépend de l'impédance, du nombre d'onde et de l'épaisseur de l'échantillon. Dans le cas de la mousse, on voit apparaître une succession de résonances (voir la figure 3 de l'article 8) qui permettent d'en savoir plus. En effet, on montre que, pour chaque pic, la fréquence centrale est associée à la vitesse de phase du son dans la mousse, la largeur à l'atténuation, et la hauteur à la masse volumique. On peut donc déterminer ces 3 quantités et tracer leur valeur en fonction de la fréquence, comme dans la figure 4 de l'article 8.

Un des principaux résultats de l'article 8 est de montrer que, pour les tailles de bulles utilisées et aux fréquences explorées, la loi de Wood donne une très bonne prédiction de la vitesse en fonction de la masse volumique (voir la figure 4d). On montre aussi qu'une mesure acoustique permet de déterminer la fraction volumique de liquide dans une mousse, ce qui

7. Merci à Dominique Langevin pour ce précieux conseil, qui a eu des répercussions au delà des mousses.

FIGURE 4.5 – La technique “2 seringues” consiste à remplir une seringue d’un volume  $V_\ell$  de liquide moussant, de compléter jusqu’à  $V$  avec du gaz, puis de connecter la seringue à une seconde seringue. Au bout de quelques va-et-vients d’une seringue à l’autre, on obtient une mousse de très petites bulles, d’aspect semblable à de la mousse à raser. Avec de l’air pollué au perfluorohexane, le rayon moyen initial des bulles est de l’ordre de  $20\ \mu\text{m}$ . La taille des bulles dépend très peu de la géométrie de la connexion entre les seringues. Les gros avantages de cette technique de fabrication sont qu’elle permet de choisir la fraction de liquide de la mousse, qui sera donnée par  $\Phi = V_\ell/V$ , et qu’on choisit la composition chimique de la solution moussante. Deux paramètres que l’on ne contrôle pas lorsqu’on travaille avec une mousse à raser commerciale.



peut être utile pour caractériser des mousses non-conductrices, pour lesquelles les méthodes classiques de mesure de conductivité ne fonctionnent pas.

### Effet de la physico-chimie

Le cas de la mousse à raser est l’occasion d’approfondir un point à peine évoqué dans l’article 8, celui de l’influence de la composition physico-chimique de la mousse sur ses propriétés acoustiques. Pour la mousse Gillette, on mesure une vitesse nettement supérieure à celle prévue par Wood, ce qui avait été déjà observé (voir la [table 2](#) de l’article 8). Le son se propage en effet à environ  $60\text{ m/s}$  quand la loi de Wood isotherme prévoit de l’ordre de  $40\text{ m/s}$  pour une fraction de liquide de  $7\%$  (voir la [figure 4d](#)). Cela ne provient pas de la taille des bulles, puisque la distribution est très similaire à celle qu’on retrouve dans une mousse de SDS pour laquelle Wood s’applique bien (voir la [figure 2](#) de l’article 8). Un effet thermique n’explique pas non plus le désaccord parce qu’à  $1\text{ kHz}$  on s’attend bien à être en régime isotherme.<sup>8</sup> Quand bien même on serait en régime adiabatique, comme  $\gamma = 1.2$  pour le gaz de la mousse à raser, cela ne monterait la prédiction de Wood qu’à  $43\text{ m/s}$ , encore loin des  $60\text{ m/s}$  mesurés.

On peut chercher une explication du côté d’une élasticité supplémentaire dans le système. La prédiction de Wood prédit que cette élasticité est essentiellement donnée par le gaz, via le terme en  $\kappa P_0$ . Comme dans le cas des milieux bulleux élastiques, on pourrait invoquer un module de cisaillement supplémentaire, responsable d’un accroissement de la vitesse de Wood (voir l’équation (8) de l’article 3 par exemple). Il faut alors un module de cisaillement de  $\mu = (3/4)(v^2\rho\Phi(1 - \Phi) - \kappa P_0) \simeq 10^5\text{ Pa}$  pour expliquer les  $20\text{ m/s}$  en excès. Le problème est que lorsqu’on fait une mesure de rhéologie du liquide d’une mousse à raser totalement drainée,

8. La longueur de pénétration thermique dans le gaz de la mousse Gillette est de l’ordre de  $\sqrt{D_{\text{th}}/\omega} = 28\ \mu\text{m}$ , à  $1\text{ kHz}$ . D’après la figure [B.3](#), on est encore très proche de  $\kappa = 1$  puisque cela fait  $R\sqrt{\omega/D_{\text{th}}} \simeq 1$ . On prend, comme Mujica et Fauve [\[51\]](#),  $D_{\text{th}} = 5 \times 10^{-6}\text{ m}^2/\text{s}$  pour le mélange de gaz de la Gillette.

on ne trouve pas de module de cisaillement significatif. Une autre piste, évoquée dans [51], consiste à regarder du côté de l'élasticité des films. La mousse à raser ayant une physico-chimie très riche, on peut imaginer que les films deviennent suffisamment rigides pour influencer sur la raideur totale de la mousse. Cette hypothèse est mise à mal par les résultats expérimentaux reportés sur la figure 4.6, qui montrent que même avec des surfactants connus pour rendre les interfaces particulièrement rigides, on ne trouve pas de déviation à la loi de Wood, à basses fréquences. Notons que des mesures sur films uniques, à MSC, ont montré que l'utilisation de "surfactants rigides" n'affectait pas la réponse vibrationnelle des films [69]. Des effets, légers, de la physico-chimie sur la réponse acoustique d'une mousse ont été observés, mais à plus hautes fréquences [70].

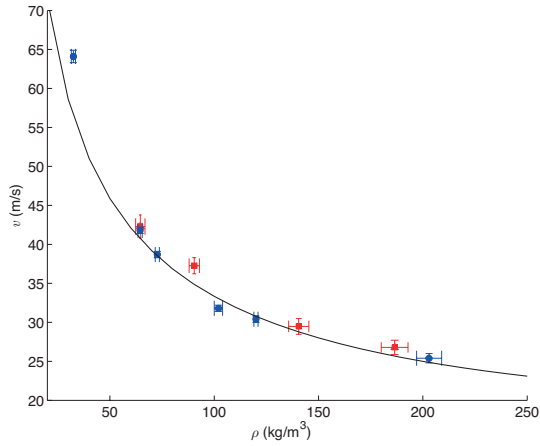


FIGURE 4.6 – Vitesse de phase en fonction de la masse volumique, mesurées avec le tube d'impédance, pour deux mousses de compositions physico-chimiques donnant a priori des interfaces rigides. Pour les points rouges, on a utilisé une "solution de Denkov" [71], et le gaz était constitué d'1/3 de  $C_2F_6$  et 2/3 d'air. Pour les points noirs, le gaz était de l'air saturé en  $C_6F_{14}$  et on a utilisé une solution de SDS à 10 g/L et d'un polymère à 4 g/L (jaguar C13-S, un dérivé de la gomme de guar, fourni par Arnaud Saint-Jalmes). Dans les deux cas, on ne constate pas d'écart systématique à la loi de Wood isotherme (courbe noire).

À l'heure actuelle, on ne comprend toujours pas pourquoi la vitesse du son dans la mousse à raser Gillette est plus grande que ce que prévoit Wood. Une hypothèse est qu'il y a malgré tout un module de cisaillement qui apparaît dans la phase liquide lorsque celle-ci est confinée comme c'est le cas dans la mousse. Cela expliquerait que le liquide seul, sans confinement, ne présente pas de module de cisaillement. Pour éclaircir la situation, il faudrait trouver une formulation minimale, plus simple que la Gillette, qui présente la même déviation. Pour l'instant, la Gillette fait figure de mousse d'exception pour ce qui est du comportement acoustique. C'est une ironie du sort, parce que la Gillette a par ailleurs servi de mousse étalon pour de nombreuses études de rhéologie, sans présenter d'anomalie.

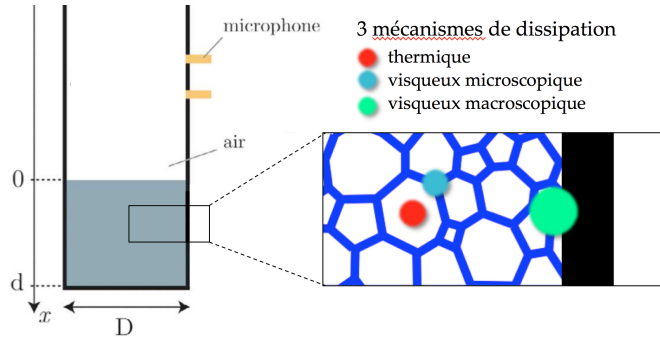
## L'atténuation

L'article 8 propose, sur la figure 7, une comparaison entre l'atténuation mesurée dans 3 échantillons et les prédictions des modèles de WT et GSV. On constate que WT sous-estime l'atténuation, signe que la dissipation thermique n'est pas la seule source d'atténuation, tandis que GSV la sur-estime, ce qui indique que l'introduction d'une viscosité effective via la perméabilité n'explique pas bien les mesures.

On va ici un peu plus loin dans l'analyse de l'atténuation, en présentant quelques résultats

préliminaires, non encore publiés. Il convient tout d'abord d'ajouter une troisième source de dissipation, évoquée dans l'article 8, qui provient des échanges thermiques et visqueux entre l'échantillon et la paroi du tube. Cette atténuation, bien connue dans les tubes d'impédance, est donnée par la loi de Kirchhoff [72] et dépend du rapport entre les longueurs de diffusion et le diamètre du tube. Les tubes d'impédance sont conçus pour que cette source de dissipation soit faible dans l'air. Mais dans une mousse liquide, la viscosité est telle qu'on ne peut plus négliger les frottements sur les parois. Cela se voit d'ailleurs sur la figure 4c de l'article 8 : on y constate que les courbes d'atténuation ne semblent pas tendre vers zéro pour une fréquence nulle. C'est en adéquation avec la loi de Kirchhoff, parce que les longueurs de diffusion, et donc l'atténuation, sont d'autant plus grandes que la fréquence est basse.

FIGURE 4.7 – Vision schématique des trois mécanismes de dissipation d'une onde acoustique à l'œuvre pour une mousse dans un tube d'impédance. La dissipation thermique dépend des propriétés du gaz, la visqueuse microscopique des écoulements locaux au sein de la mousse, et la visqueuse macroscopique des déplacements globaux à la paroi.



La figure 4.7 propose une vision schématique des 3 sources de dissipation identifiées. En régime de faible atténuation ( $\alpha \ll \omega/v$ ), si on ajoute la loi de Kirchhoff<sup>9</sup> à l'équation de Waterman et Truell (4.1) (en négligeant la tension de surface et l'inertie), on obtient une loi d'atténuation de la forme :

$$\alpha = \frac{\omega}{v} \left[ \frac{\text{Im}(\kappa)}{2\text{Re}(\kappa)} + \frac{2\eta_{\text{mic}}\omega}{3P_0} + \sqrt{\frac{\eta_{\text{mac}}(\omega)}{2\Phi\rho\omega}} \frac{1}{D} \right], \quad (4.5)$$

où  $D$  est le diamètre du tube, et  $\eta_{\text{mic}}$  et  $\eta_{\text{mac}}$  désignent respectivement les viscosités microscopiques et macroscopiques. Dans une description de liquide bulleux concentré,  $\eta_{\text{mic}}$  correspondrait à la viscosité de l'eau. Pour GSV, il faudrait tenir compte d'une loi de Darcy pour l'écoulement dans le réseau de bord de Plateau. La seule hypothèse que nous allons faire pour l'instant est que cette viscosité ne dépend pas de la fréquence. La viscosité macroscopique, à l'échelle de la mousse, en revanche, est connue pour dépendre de la fréquence. Les mesures en rhéologie standard ont montré que la viscosité des mousses suivait une loi en  $1/\sqrt{\omega}$  [73], un comportement confirmé à plus hautes fréquences [74, 75]. On va donc prendre une loi en  $\eta_{\text{mac}}(\omega) = \eta_{\text{mac}}^0 \sqrt{\omega^0/\omega}$ ,  $\eta_{\text{mac}}^0$  correspondant à la viscosité macroscopique à  $\omega^0/2\pi = 1$  kHz. On peut alors mettre (4.5) sous la forme

$$\frac{v}{\omega}(\alpha - \alpha^{\text{th}}) = \frac{2\eta_{\text{mic}}}{3P_0}\omega + \sqrt{\frac{\eta_{\text{mac}}^0 \sqrt{\omega^0}}{2\Phi\rho D^2}}\omega^{-3/4}, \quad (4.6)$$

9. On ne considère que la longueur de pénétration visqueuse, les effets thermiques étant supposés négligeables à l'échelle du diamètre complet du tube.

où  $\alpha^{\text{th}}$  désigne l'atténuation thermique. Les deux atténuations visqueuses ont donc des comportements fréquentiels très différents. On peut ainsi imaginer déterminer  $\eta_{\text{mic}}$  et  $\eta_{\text{mac}}^0$  à partir de mesures de l'atténuation en fonction de la fréquence, à condition d'être capable de soustraire l'atténuation thermique.

TABLE 4.2 – Caractéristiques thermiques pour les 3 gaz, et ordres de grandeur de l'atténuation pour les 4 mousses exemples.

mousse	$\gamma$	$D_{\text{th}}$ (m <sup>2</sup> /s)	$\langle R \rangle$ ( $\mu\text{m}$ )	$(v/\omega)\alpha_{\text{max}}^{\text{th}}$	$f_{\text{max}}$ (kHz)
20 (Gillette)	1.10	$5 \times 10^{-6}$	25	0.017	6
26 (gaz 2)	1.20	$12 \times 10^{-6}$	32	0.030	9
4 (gaz 1)	1.12	$8 \times 10^{-6}$	38	0.020	4.5
11 (gaz 1)	1.12	$8 \times 10^{-6}$	15	0.020	28

On va supposer que l'atténuation thermique est donnée par la même loi que celle qui s'applique à un milieu bulleux. Pour une bonne évaluation des pertes thermiques, il faut alors une bonne connaissance du gaz présent dans la mousse, et de la distribution en taille des bulles.

Trois types de gaz ont été utilisés. Celui de la Gillette (un mélange d'isobutane et de propane) et deux mélanges d'air et de  $C_6F_{14}$ . Le premier mélange (gaz 1) correspondait à de l'air saturé en  $C_6F_{14}$ , obtenu en prélevant le gaz d'une bouteille d'air contenant un fond de perfluorohexane liquide. Le second mélange (gaz 2) correspondait à de l'air moins saturé puisque la seringue était remplie pour partie de l'air de la bouteille, et pour une autre de l'air de la pièce. Les caractéristiques thermiques des trois mélanges sont reportés dans la table 4.2.

Pour la taille des bulles, la figure 4.8 permet de visualiser le spectre de rayons moyens et de polydispersités que nous avons exploré avec les 26 échantillons de mousse testés. À vrai dire, ce spectre est assez restreint, parce que la technique 2 seringues donne à peu près toujours la même distribution en taille. On constate qu'en saturant moins l'air des bulles en  $C_6F_{14}$ , on obtient généralement des mousses plus polydisperses (voir les points verts de la figure 4.8 de gauche). Les échantillons avec “grosses” bulles ( $40 \mu\text{m}$ ) de polydispersité autour de 0.3 ont été obtenus en laissant la mousse vieillir dans la seringue avant de faire la mesure acoustique. Sur la figure 4.8 de droite, on présente la distribution cumulée mesurée pour 4 échantillons qui nous serviront d'exemples par la suite. Une remarque importante : la mesure avec le tube d'impédance ne permet pas de profiter du vieillissement de la mousse pour explorer différents rayons de bulles. En effet, le vieillissement de la mousse s'accompagne d'un gonflement, et donc d'un changement de l'épaisseur  $d$  de l'échantillon. Or si on ne connaît pas bien  $d$ , toute l'analyse devient impossible.

Connaissant la taille moyenne des bulles et les caractéristiques du gaz, on peut évaluer la fréquence pour laquelle l'atténuation thermique sera maximale, ainsi que l'ordre de grandeur de ce maximum (voir la figure B.3 en annexe).

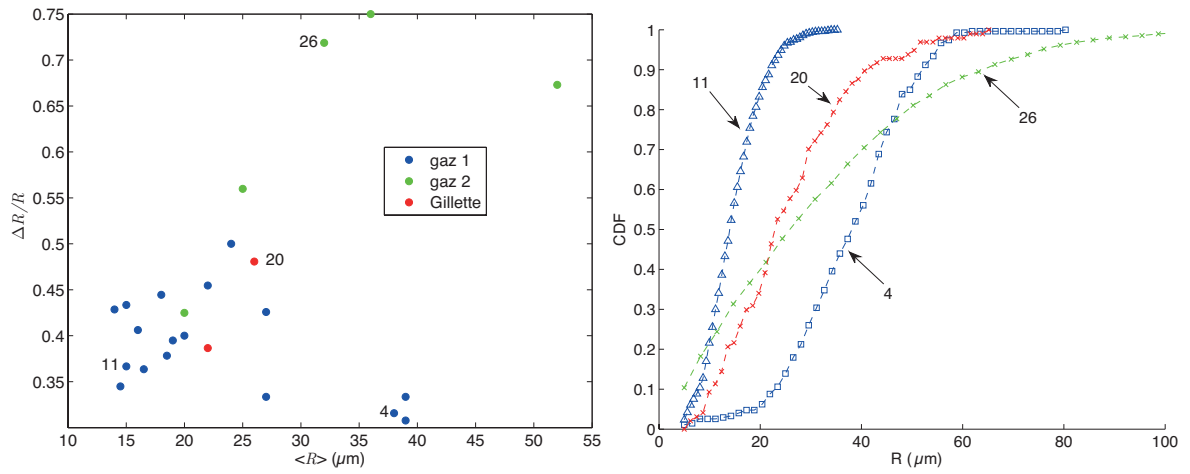


FIGURE 4.8 – **Gauche** : Polydispersité (déviatoin standard sur moyenne) en fonction du rayon moyen pour 26 échantillons passés dans le tube d'impédance. Les 3 gaz différents sont repérés par des couleurs différentes (voir table 4.2). **Droite** : Exemples de mesures de la distribution cumulée des rayons pour 4 échantillons.

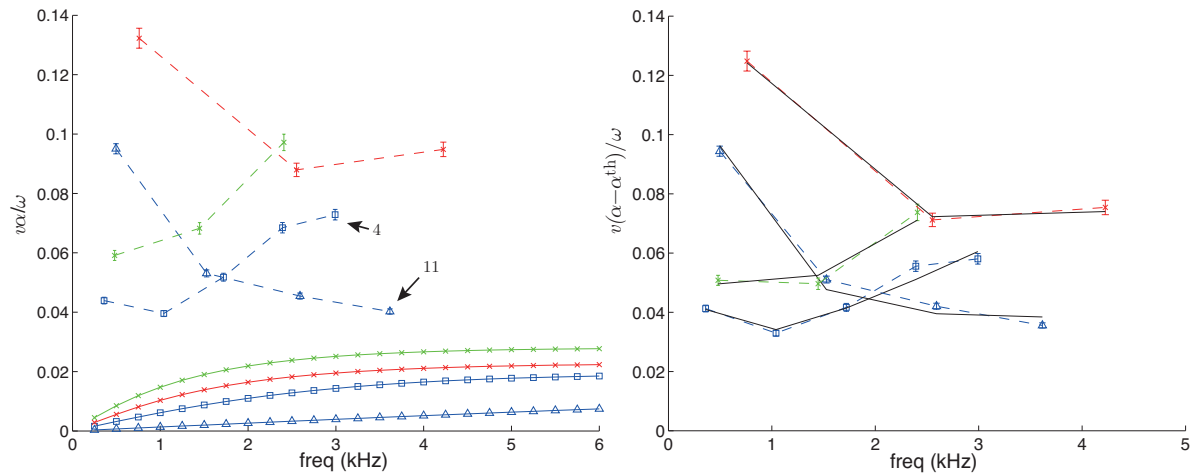


FIGURE 4.9 – **Gauche** : atténuation réduite mesurée (lignes hachurées) et prédite pour leur composante thermique (lignes continues), pour les 4 mousses exemples. **Droite** : Mesures de l'atténuation soustraites de la prédiction pour la partie thermique.

Les valeurs sont données dans les deux dernières colonnes de la table 4.2. Un calcul plus précis permet de tenir compte de la distribution exacte. C'est ce qui est reporté sur la figure 4.9 où les atténuations thermiques réduites (*i.e.* adimensionnées par la longueur d'onde effective) calculées par le modèle sont tracées en fonction de la fréquence pour les 4 échantillons exemples. On constate que l'atténuation thermique seule n'explique pas les mesures. En revanche, on trouve, comme attendu, un comportement non monotone, signe probable que la viscosité macroscopique joue à basses fréquences tandis que la viscosité microscopique domine à hautes fréquences. On peut aller jusqu'à ajuster les points expérimentaux par la loi (4.6) pour déterminer un  $\eta_{\text{mic}}$  et un  $\eta_{\text{mac}}^0$  pour chaque échantillon. Notons que l'ajustement est parfois audacieux, lorsqu'on ne dispose que de 3 points de mesures (pour ajuster une loi à 2



paramètres). Mais, comme annoncé, il s'agit de résultats préliminaires.

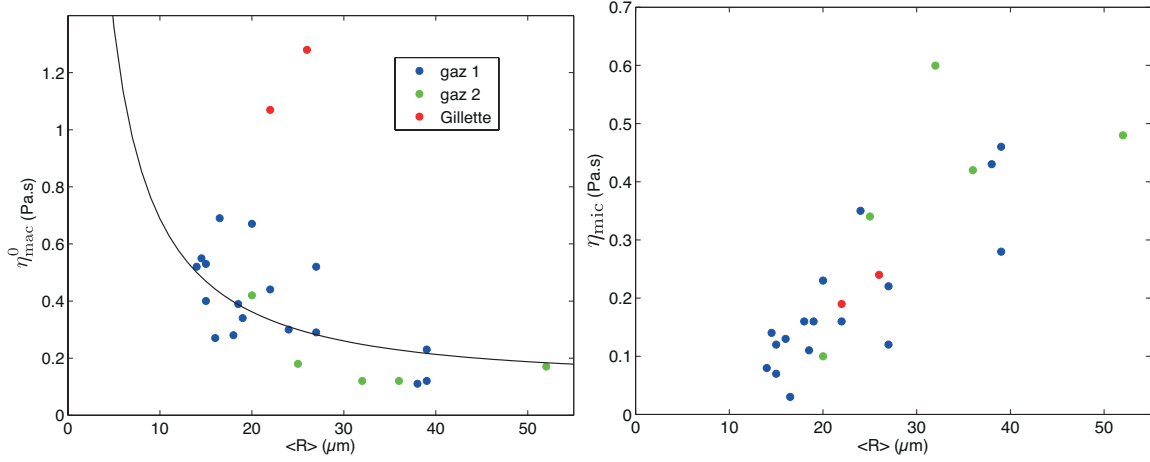


FIGURE 4.10 – Viscosités macroscopique et microscopique en fonction du rayon moyen des bulles, résultats des ajustements tels que ceux montrés sur la figure 4.9 de droite. Les différents types de gaz sont codés par les mêmes trois couleurs que dans les figures précédentes. À gauche, on compare à la loi trouvée par Costa *et al.*, en  $0.13\sqrt{(1 + (52\text{ }\mu\text{m}/R)^2)}$  Pa.s, pour un surfactant donnant des interfaces peu rigides (voir section IV.1, page 1104 dans [73]).

La figure 4.10 propose une synthèse des ajustements opérés sur l'ensemble des données. Lorsqu'on essaie de tracer  $\eta_{\text{mac}}^0$  et  $\eta_{\text{mic}}$  en fonction des différents paramètres, on ne trouve de comportement à peu près clair que lorsqu'on trace en fonction du rayon moyen des bulles,  $\langle R \rangle$ . Les résultats sont très bruités, mais il est intéressant de constater que, pour la viscosité macroscopique, on trouve un ordre de grandeur tout à fait comparable aux mesures de Costa *et al.* [73], sauf pour la mousse à raser. Pour la viscosité microscopique, les données ne vont pas dans le sens du modèle GSV puisque  $\eta_{\text{mic}}$  croît avec  $\langle R \rangle$ , alors que GSV prévoit une loi qui ne dépend pas du rayon des bulles. En outre, on ne trouve pas de dépendance claire en  $\Phi$ , alors que GSV prédit que  $\eta_{\text{mic}} \sim 1/\Phi$  (voir Eqs (4.2) et (4.3c)). Les expériences à hautes fréquences de l'Article 10 seront l'occasion de revenir sur l'origine de cette viscosité microscopique.

# Acoustic characterisation of liquid foams with an impedance tube

Juliette Pierre<sup>1</sup>, Reine-Marie Guillermic<sup>2</sup>, Florence Elias<sup>1,3</sup>, Wiebke Drenckhan<sup>2</sup>, and Valentin Leroy<sup>1a</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire MSC, Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), Paris, France

<sup>2</sup> Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud - UMR 8502, Orsay, France

<sup>3</sup> Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05

July 24, 2013

**Abstract.** Acoustic measurements provide convenient non-invasive means for the characterisation of materials. We show here for the first time how a commercial impedance tube can be used to provide accurate measurements of the velocity and attenuation of acoustic waves in *liquid* foams, as well as their effective “acoustic” density, over the 0.5-6 kHz frequency range. We demonstrate this using two types of liquid foams: a commercial shaving foam and “home-made” foams with well-controlled physico-chemical and structural properties. The sound velocity in the latter foams is found to be independent of the bubble size distribution and is very well described by Wood’s law. This implies that the impedance technique may be a convenient way to measure *in-situ* the density of liquid foams. Important questions remain concerning the acoustic attenuation, which is found to be influenced in a currently unpredictable manner by the physico-chemical composition and the bubble size distribution of the characterised foams. We confirm differences in sound velocities in the two types of foams (having the same structural properties) which suggests that the physico-chemical composition of liquid foams has a non-negligible effect on their acoustic properties.

**PACS.** 4 7.57.Bc, 43.20.+g

## 1 Introduction

Liquid foams consist of closely packed gas bubbles, which are immersed in a liquid carrier matrix and stabilised by surfactants [1,2]. They are widely used in applications and as model systems to deepen our understanding of the physical properties of complex fluids. Due to their complex properties, *in-situ* characterisation of structural or dynamic properties of liquid foams remains a great challenge. This concerns in particular their acoustic properties. Whilst acoustic characterisation has become a standard technique in the case of solid foams [3], emulsions or particulate dispersions [4], the acoustic properties of liquid foams remain to be elucidated. Isolated progress has been made in the subject [5,6], showing, for example that the isothermal Wood’s law [7] may be used reliably to predict the velocity of sound in most liquid foams, when the bubbles are much smaller than the acoustic wavelength:

$$v_W = \sqrt{P_0/(\rho_\ell \Phi(1 - \Phi))}, \quad (1)$$

where  $P_0$  is the ambient pressure,  $\rho_\ell$  the mass density of the liquid and  $\Phi$  the liquid volume fraction. However, for some foams [8,9], the sound velocity is larger than what is predicted by Wood’s law. Of particular interest is the presence of resonance effects [10–12]. This may provide

an elegant tool for bubble size measurements in liquid foams, but its precise nature remains to be elucidated. Furthermore, many questions remain concerning the complex interplay of different dissipation mechanisms and the influence of the physico-chemical nature of the foam. For example, it is not clear how the presence of an interfacial or bulk visco-elasticity influences the acoustic properties of the foam.

Comparison of acoustic investigations done up to date remains a challenging exercise due to significant variations in acoustic techniques applied or types of foams used (see Appendix B). To overcome this problem, we propose here the use of a well-established, commercially available tool: the impedance tube [13]. This technique is widely used for the characterisation of porous media for frequencies up to a few kilohertz. It is usually not used with liquids, but we show here that the same device can be employed for the characterisation of liquid foams without technical adaptation (Section 2.3). We furthermore propose a procedure for analyzing the data to obtain precise measurements of the foam density, and velocity and attenuation of the acoustic waves for a frequency range of 0.5-6 kHz (Section 3). We demonstrate the success of this approach (Section 4) using liquid foams in which we control explicitly the most important parameters, such as the physico-chemical composition, the bubble size distribution and the liquid volume fraction (Section 2.2). We show that care needs to

<sup>a</sup> e-mail: valentin.leroy@univ-paris-diderot.fr

be taken when working with physico-chemically less controlled foams like shaving foams, as has been done in the past.

The interest of the application of this impedance technique to liquid foams is two-fold. On the one hand it may provide a convenient tool for the *in-situ* characterisation of liquid foams. On the other hand it may help shedding light on important questions concerning the response of liquid foams to rapid deformations in complementing more established foam characterisation techniques (like rheometers), which are limited to excitation frequencies of about 10 Hz.

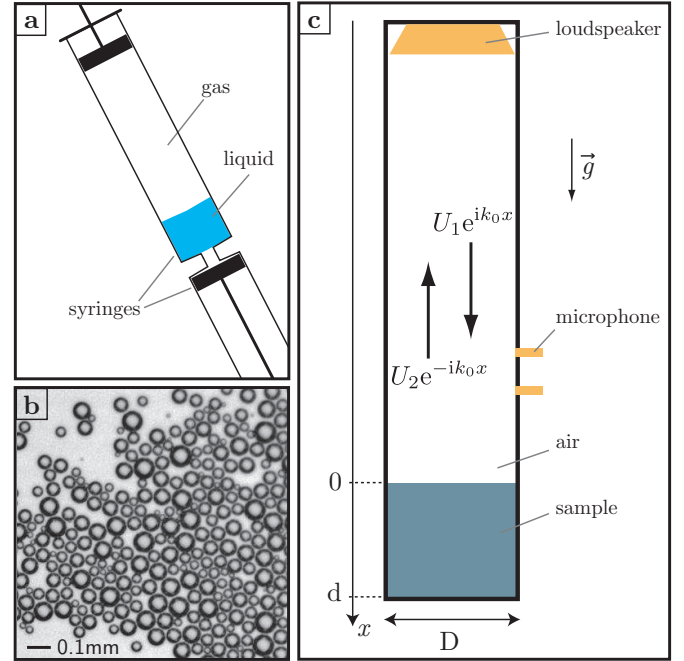
## 2 Materials and methods

### 2.1 Materials

The samples investigated here are liquid foams. We chose two representative systems. The first one is a commercial shaving foam (Gillette, “Sensitive skin”) which serves to compare with previous literature [9,11,14]. The bubbles of a shaving foam are composed of mixtures of butane/propane and the foaming solution contains a complex physico-chemical composition designed to optimise the stability and flow properties of the foam. Since this exact composition is unknown, we have chosen to work in parallel with a physico-chemically simpler system whose composition we can control. For this purpose we use an aqueous solution (millipore water) containing 10 g/L of SDS (sodium dodecyl sulfate) and 0.5 g/L of xanthane. SDS is known to be a good foamer, while xanthane is an anionic polysaccharide (Sigma Aldrich) with a cellulosic backbone which is commonly used as foam stabiliser [15]. This is due to its visco-elastic nature even at low concentration, which slows down the gravity-driven drainage of liquid between the bubbles (Appendix C). Moreover, xanthane solutions are strongly shear thinning at the concentrations used here, which is an important prerequisite for reliable foaming. In order to further reduce any ageing effects of the foam, we generate the foams using air containing  $C_6F_{14}$ , which is nearly insoluble in water. The presence of these molecules generates strong partial pressures which counteract the typically encountered exchange of more soluble gasses (like nitrogen in air) between bubbles of different pressures. Combining the effect of the xanthane and the  $C_6F_{14}$ , we can reasonably assume that the foams remain homogeneous during the acoustic measurement (less than 1 min). Only in the case of foams containing a high liquid content, the effect of the xanthane is less efficient, hence leading to a gradient in liquid fraction, which is discussed in more detail in appendix C. Note that Gillette foams are also known for ageing very slowly [11].

### 2.2 Foaming and foam characterisation

Gillette foams are generated by simply dispensing them from their commercial foaming device. In order to generate SDS foams with similar bubbles sizes and liquid

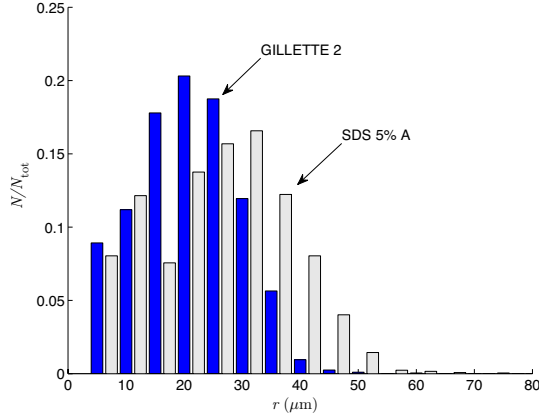


**Fig. 1.** Scheme of the setups used to produce (a), characterise (b) and measure the acoustical properties (c) of liquid foams. (a) With the two-syringe technique, liquid foams with tens of micrometers bubbles and controlled liquid fraction can be obtained. (b) Typical image of a bubble raft analysed for bubble size determination (here sample SDS5%A). (c) Impedance tube: the reflection coefficient  $\mathcal{R} = U_2/U_1$  of the sample is determined by measuring the pressure field with two wall-mounted microphones. Note that for measurements with liquid foams, the tube is hold vertically.

fractions, we use a double-syringe technique (see Fig. 1a). This technique consists in connecting two syringes which contain the gas and the liquid to be foamed. By repeatedly pushing liquid and gas from one syringe to the other through the narrow connection (here 10 mm long and 1.6 mm wide), both mix due to the strong shearing action in the constriction and create a homogenous foam with bubble sizes of the order of 10-100 micrometers. The liquid fraction of the final foam is fixed by the ratio of the amount of liquid to the total internal volume of one syringe. If the liquid phase has a good foamability, liquid fractions from 3 to 30% can be obtained, with a typical accuracy of 1% with the syringes we used.

In order to measure the bubble size distribution of the different generated foams, we take a small drop of the liquid foam and pour it on a bath of the foaming liquid, hence generating a monolayer of bubbles (see figure 1b). This two-dimensional structure can be easily imaged using a digital camera and analysed using an image analysis software (see Appendix A). We show two typical size distributions in Fig. 2, for a Gillette and an SDS foam. We use these distributions to calculate the mean bubble radius, the polydisperse index (normalised standard deviation) and the Sauter mean radius ( $R_{32} = \langle R^3 \rangle / \langle R^2 \rangle$ ) [16], the latter of which is commonly the more appropriate quan-

tity in the description of dynamic properties of polydisperse foams since it measures the volume to surface ratio of the bubbles.



**Fig. 2.** Histograms of two representative bubble size distributions, for two liquid foam samples.

The results of Section 4 will be discussed using eight representative foam samples whose properties are summarised in Table 1. It is important to note that the difference between the A and the B SDS foams resides in the content of  $C_6F_{14}$  in the gas of the bubbles. While in the A group the air had been saturated with  $C_6F_{14}$ , foams of the B group have a very small amount of  $C_6F_{14}$ .

**Table 1.** Liquid fraction  $\Phi$ , mean bubble radius  $\langle R \rangle$ , polydispersity index PI and Sauter mean radius  $R_{32}$  for 8 of the investigated liquid foams. The liquid fractions reported for the SDS samples correspond to the target value of the 2-syringe technique; for the Gillette samples,  $\Phi$  was estimated by weighting.

Sample	$\Phi$ (%)	$\langle R \rangle$ ( $\mu\text{m}$ )	PI	$R_{32}$ ( $\mu\text{m}$ )
SDS 5 % A	5	27	0.42	38
SDS 5 % B	5	54	0.65	120
SDS 10 % A	10	22	0.46	33
SDS 10 % B	10	20	0.70	53
SDS 20 % A	20	16	0.49	26
SDS 20 % B	20	25	0.57	46
GILLETTE 1	7	26	0.51	44
GILLETTE 2	7	22	0.43	32

### 2.3 Acoustic measurements

The acoustic measurements were performed with a commercial impedance tube (type 4206, B&K), which employs the two-microphone technique [17, 13, 18]. The principle of the method is the following: a loudspeaker generates plane waves in the tube, which are reflected by the sample with a reflection coefficient  $\mathcal{R} = U_2/U_1$  (see Fig 1c). By measuring the pressure field at two points in the tube, one can

determine  $\mathcal{R}$ , which is related to the acoustic impedance of the sample. As shown in Section 3, if the thickness  $d$  of the sample is precisely known, one can determine the density of the sample, as well as the acoustic velocity and attenuation.

In practice, the impedance tube was installed vertically and the liquid foam was poured into the sample holder, typically on a thickness of the order of 2 cm. Then its surface was flattened and, if necessary, the position of the backwall was adapted so that the surface of the liquid foam was at  $x_0 = 0$  (see Appendix D). The tube was closed with the sample in place, and the acoustic measurement was performed, which took less than one minute. After the measurement, the holder was opened and the precise thickness of the sample was measured with a caliper ( $\pm 0.5$  mm). Bubble sizes were measured before and after the acoustic measurement and found to be the same.

Due to gravity, there is a gradient of liquid fraction within the foam. However, given the bubble sizes and the thickness investigated here, the samples can be considered as homogeneous to a first approximation. Indeed, a characteristic length over which the foam may be considered as homogenous can be estimated by  $\ell_c^2/(\sqrt{\Phi}R_{32})$  [19], where  $\ell_c = \sqrt{\gamma/\rho g}$  is the capillary length. This is of the order of 20 cm for most of the foams we consider (see Table 1). A more detailed discussion of the drainage can be found in Appendix C.

### 3 Data Analysis

In the case of a semi-infinite sample, the reflection coefficient is directly related to the impedance  $Z$  of the sample by  $\mathcal{R} = (Z - Z_0)/(Z + Z_0)$ , where  $Z_0$  is the impedance of air.<sup>1</sup> In the case of a finite sample, one defines an *input* impedance  $Z^*$  (also known as the surface impedance), which accounts for the multiple reflections in the sample, defined by

$$Z_0/Z^* = \frac{1 - \mathcal{R}}{1 + \mathcal{R}}. \quad (2)$$

$Z_0/Z^*$  is the dimensionless input admittance of the sample. The backplate behind the sample (at  $x = d$ ) being designed to be perfectly rigid, the input impedance is given by

$$Z^* = iZ/\tan(kd), \quad (3)$$

where  $k = k' + ik''$  is the complex wavenumber in the sample, and  $d$  its thickness. As  $Z = \rho\omega/k$ ,  $Z^*$  depends on  $k$  in a complicated way. If the attenuation length is larger than the sample thickness, *i.e.*  $k''d \ll 1$ , Eq. (3) can be simplified into

$$\frac{Z_0}{Z^*} = -i\frac{Z_0}{\omega\rho}(k' + ik'')\frac{\tan(k'd) + ik''d}{1 - ik''d\tan(k'd)}. \quad (4)$$

<sup>1</sup> The impedance of air is  $Z_0 = \rho_0 c_0$ , where  $\rho_0$  is the density of air and  $c_0$  the speed of sound in air;  $Z_0 = 413 \text{ N.s/m}^3$  at normal conditions (temperature of 20 °C and atmospheric pressure of 101 kPa)

An analysis of Eq. (4) shows that the real part of the admittance reaches a maximum for  $k'd = \pi/2$  (modulo  $\pi$ ). This is confirmed by our experiments, as shown in Fig. 3 which reports the dimensionless input admittance measured on a liquid foam sample as a function of frequency. The real part of the admittance indeed shows many peaks.

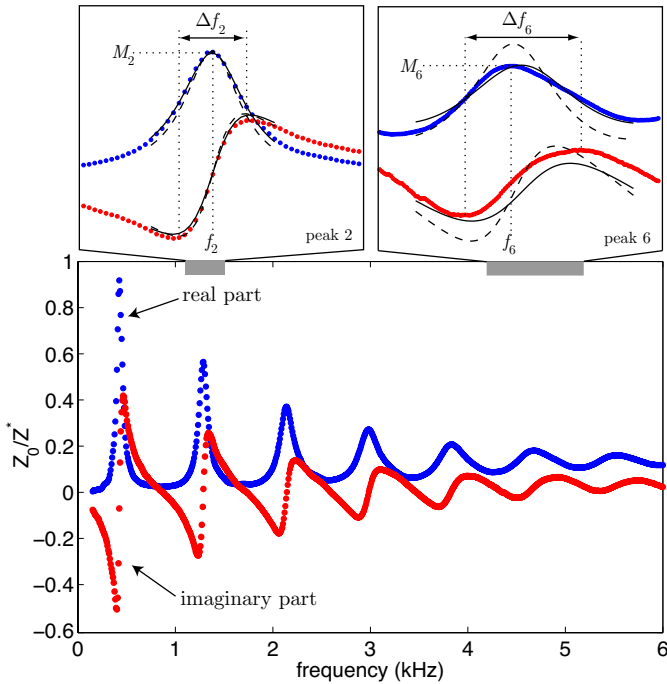
As the peaks are quite narrow, it seems reasonable to assume that  $k$  and  $\rho$  do not vary significantly with frequency within a peak. Then one can calculate that, as long as Eq. (4) holds, the velocity  $v = \omega/k'$ , attenuation  $\alpha = k''$  and mass density  $\rho$  of the sample can be determined by three features of peak  $n$ : frequency  $f_n$  and amplitude  $M_n$  of its maximum, and width  $\Delta f_n$ . For peak number  $n$ , one then has (see Appendix E)

$$v = \frac{4df_n}{1 + 2(n-1)}, \quad (5a)$$

$$\rho = \frac{Z_0}{\pi d \Delta f_n M_n}, \quad (5b)$$

$$\alpha = [1 + 2(n-1)]\pi \frac{\Delta f_n}{4df_n}. \quad (5c)$$

As an example, for the second peak of Fig. 3, one can



**Fig. 3.** Dimensionless input admittance measured as a function of the frequency; here for sample SDS 10%A, with thickness  $d = 1.93 \pm 0.05$  cm. Insets: close-ups of the second and sixth peaks, showing result of the local fitting. Eq. (3) is plotted for two cases: with the parameters given by Eqs. (5) (dashed lines) and with the ones given by the least square fit (solid lines).

measure  $f_2 = 1.29$  kHz,  $\Delta f_2 = 0.10$  kHz and  $M_2 = 0.565$ , which leads to  $\rho = 119$  kg/m<sup>3</sup>,  $v = 33$  m/s,  $\alpha = 9$  m<sup>-1</sup>.

When Eq. (3) is plotted with these values (see top left inset in Fig. 3, dashed lines), a good agreement is found with the experimental data. However, as the attenuation increases with frequency, the  $k''d \ll 1$  approximation becomes less accurate at higher frequencies. For example, for the sixth peak, when Eq. (3) is plotted with the values given by Eqs. (5), the agreement is not satisfactory. A better agreement is obtained when a least square fit is performed, using the values of Eqs. (5) as first guesses (see solid lines in the insets of Fig. 3). Note that the fitting is done only on the real part of the admittance, because the imaginary part is sensitive to the exact position of the surface of the sample (see Appendix D).

From the  $Z_0/Z^*$  vs  $f$  curve, the peaks were fitted to determine  $\rho$ ,  $v$  and  $\alpha$  as functions of frequency. The number of frequency points accessible depended on the number of peaks one could analyze. For sample SDS 10%A (Fig. 3), seven peaks could be analyzed, given access to measurements from 0.5 to 5.5 kHz.

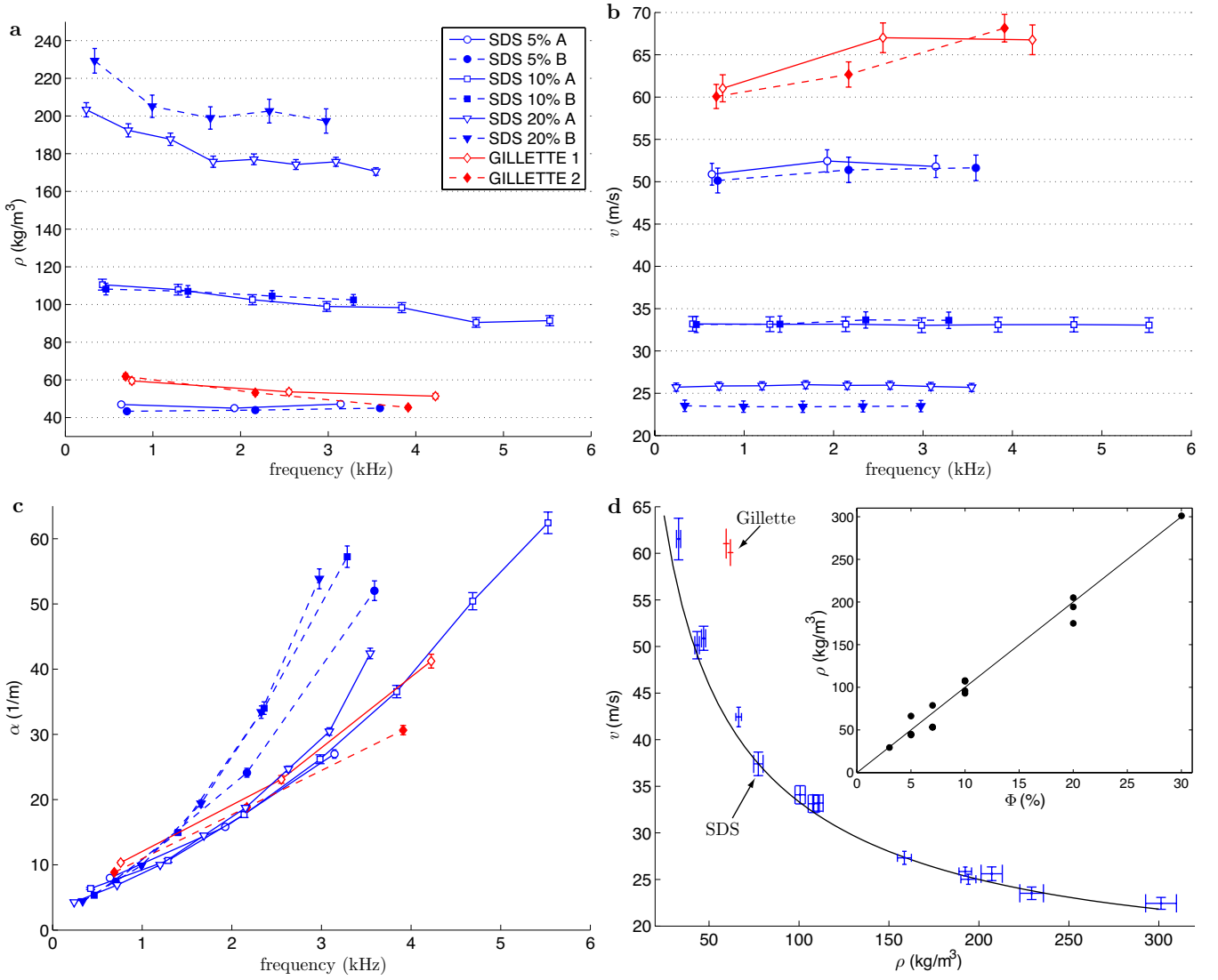
## 4 Results

### 4.1 Velocity and density

It is important to note that, throughout this article, we call density (noted  $\rho$ ) the *effective* density of the foam, *i.e.* the one measured acoustically which we then compare to the effective density measured by non-acoustic means, referred to as the “liquid fraction” in order to make the difference. Figures 4a and b show the density and velocity found for the eight different liquid foam samples presented in Table 1. For each liquid fraction, very similar results are found for samples A and B, indicating that  $\Phi$  is the main parameter governing  $v$  and  $\rho$ . As expected for liquid foams, very low sound velocities are found. Furthermore, the measured densities are very close to the average densities of the sample (see inset of Fig. 4d).

For the six SDS foams, the velocity is found to be constant with frequency. On the other hand, the densities seem to decrease with frequency, the slope being more pronounced for humid foams. Even though effective densities decreasing with frequency have been reported in porous materials [3], it is hard to believe this effect to be physical, especially because this should also give a frequency dependence for the velocity. An explanation based on the effect of the density gradient in the foam is investigated in appendix C. Another plausible explanation invokes the existence of guided modes in the tube. Indeed, the condition for only plane waves to propagate in the tube is  $\lambda \geq 2D$ , where  $\lambda$  is the acoustic wavelength and  $D$  the diameter of the tube. The impedance tube is specifically designed for this condition to be fulfilled in air. But in the sample, given the very low velocities in liquid foams, the wavelength can become smaller than the diameter (for  $v = 25$  m/s,  $\lambda = 2.5$  cm at 1 kHz, to be compared to  $D = 2.9$  cm for the tube we used). It is therefore possible that other modes than plane waves are excited in the foam sample, which would lead to a lower reflection coefficient.





**Fig. 4.** Measured density (a), velocity (b) and attenuation (c) as functions of the frequency for the 8 selected foams (see Table 1). (d) Sound velocity as a function of density for all the samples. Note that the values of  $\rho$  reported here correspond to the acoustical measurements. The inset shows that  $\rho$  depends on  $\Phi$  with the expected law (continuous line is  $\Phi\rho_\ell$ ).

According to Eqs. (2) and (5b), the amplitude of the admittance peak is larger when the reflection is smaller, thus leading to a lower measured density. This explanation is consistent with the experimental observation because one then expects the decrease of the estimated density to be more pronounced for high frequencies and low velocities. Note that, within this scenario, the velocity and attenuation measurements are expected to be insensitive to this effect, because they depend on the positions and widths of the peaks, not on their amplitudes.

For the two Gillette samples, the situation is different because as the measured density is found to decrease by about 20% when going from 1 to 4 kHz, the measured velocity increases by 10%. Thus a frequency dependent effective density might be physical for these samples.

As shown in Fig. 4d, an excellent agreement is found between Wood's prediction and the measured velocity as a function of the measured density<sup>2</sup> in SDS samples with liquid fractions ranging from 3 to 30%. The inset of Fig. 4d shows the measured density as a function of the liquid fraction of the foam, which we know from the preparation protocol. As one can see, both values are in good agreement.

In Gillette samples, the velocity is significantly higher than Wood prediction. This anomalously high sound velocity in Gillette was already reported [9,14,11]. The novelty of our result is that we have access to the structure

<sup>2</sup> Eq. (1) was taken for Wood's law, with  $\Phi = \rho/\rho_\ell$ . Effective densities  $\rho$  were taken as measured on the first peak because both interpretations for the frequency dependence of  $\rho$  give more credit to the low frequency value.

of the foam since we know the bubble size distribution. We hence know that SDS 5%A and Gillette 2 samples are very similar in terms of bubble sizes (see Fig. 2) and liquid fractions. It therefore confirms Mujica and Fauve's hypothesis [9] that the origin of the high sound velocity in Gillette is to be looked for in its physico-chemical composition.

#### 4.2 Attenuation

In contrast to velocity and density measurements, attenuation is found to be very dispersive and with no clear dependence on the liquid fraction (see Fig. 4c). The attenuation is of the same order of magnitude in all the samples, including Gillette samples. However, SDS *B*-samples seem to attenuate more than *A*-samples, suggesting that either the gas content or the bubble size distribution have an effect on the acoustic attenuation.

The measured attenuations can be compared to predictions of two models: Wood and Goldfarb-Shreiber-Vafina (GSV) model. A more detailed discussion of these models is given in Appendix F. It turns out that Wood's model, for which only thermal losses are significant, underestimates the attenuation, whereas GSV over-estimates it (see Fig. 7 in Appendix F).

### 5 Conclusions

Using foam samples with known physico-chemical properties and bubble size distributions, we have shown here that a vertically mounted, commercial impedance tube can be used to measure the velocity  $v$  and absorption  $\alpha$  of acoustic waves in a 0.5-6 kHz range in liquid foams. Moreover from the low-frequency measurements of the effective density  $\rho$ , one can estimate the liquid volume fraction  $\Phi$  of the foam, which gives an alternative method to weighting or to conductivity measurement. Acoustic velocity in SDS foams was found to be independent of the bubbles size and in excellent agreement with Wood's prediction. On the other hand, in foams with the same structure but different composition (Gillette) sound propagates at a significantly higher velocity, suggesting that either bulk or surface elasticity may play a role in the acoustic properties of the foam. More systematic investigations are needed to elucidate this point, as well as the exact mechanisms involved in the attenuation.

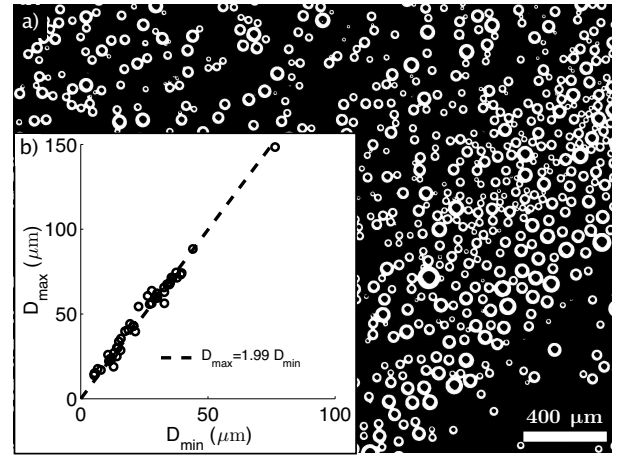
In principle, the technique is fast enough to provide time resolved measurements, hence giving access to the time evolution of the acoustic properties, which could be related to the evolution of the structure of the foams (drainage, coarsening, film rupture). Impedance tube thus appears as a promising new tool for investigating acoustic properties of liquid foams, which may help to shed light on high frequency mechanics of interfaces.

Support for the French Agence Nationale de la Recherche (project SAMOUSSE, ANR-11-BS09-001) is gratefully acknowl-

edged. The authors thank Imane Boucenna and Cyprien Gay for fruitful discussions.

### A Image analysis

The bubble size distribution is determined using images of a monolayer of bubbles, which we create by depositing a small drop of foam on a pool of the foaming solution. We image these monolayers in front of a large diffusive light source using a digital camera. For each foam sample, several images are taken to obtain representative statistics.



**Fig. 5.** (a) Images of the monolayer (here for sample Gillette 2) are thresholded and inversed. (b) The real diameter of each bubble is found to scale linearly with the diameter of the black disk inside the bubble.

In order to obtain the bubble size distributions, we use the open-source software *ImageJ*<sup>3</sup> in combination with a special protocol. To illustrate this protocol we use the sample Gillette 2 as an example. In a first step, a threshold and an inversion is applied to the bubble raft images (see Fig. 5a). As a result, all bubbles contain a black, circular area. The relationship between the size of this black disk and the real bubble size is fixed by elementary optics of light being transmitted through the bubbles. In particular, one finds that both quantities are linearly related (Fig. 5b) with the pre-factor depending on the particular set-up used. After doing a calibration measurement to obtain this prefactor, it is used for all foams imaged with the same set-up to calculate the real bubble size from the size of the disk.

The advantage of the black disks is that they can be found easily by the *ImageJ* program in an automatic manner using the “analyse particles” routine in combination with the circularity of the detected object. The size distribution of the disks is then related to the size distribution of the bubbles via the pre-factor established in Fig. 5b. From this we obtain histograms as the one shown in Fig. 2.

<sup>3</sup> <http://rsbweb.nih.gov/ij/>



## B Comparison with previous experimental results

Table 2 proposes a summary of different acoustical measurements available on liquid foams. For the sake of comparison, we focus here on foams whose liquid volume fraction is of the order of 5%, a category that includes shaving foams. Apart from the impedance tube technique described in this article, three different setups have been used:

- *Shock tube*. A thin membrane separates the foam from an high pressure chamber. When the membrane is punctured, an acoustic wave is emitted and its propagation is recorded by a serie of six microphones, giving thus access to the velocity and attenuation. The typical frequency content of the propagating pulse is 0.1-1 kHz.
- *Transmission with moving receiver*. A transducer placed at the bottom of the foam sends an acoustic signal recorded by a receiver, whose distance to the emitter can be varied. Acoustic velocity and attenuation are deduced from the measurements of the time of flight and amplitude as functions of the distance.
- *Transmission with fixed receiver*. The setup is similar to the previous one but instead of changing the emitter-receiver distance in the foam, different acquisitions with equivalent samples of different thicknesses are performed. It requires a good reproducibility of the foam samples.

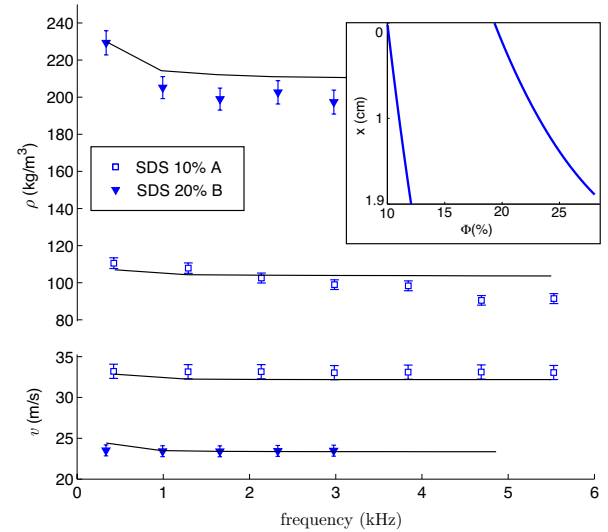
The four studies on Gillette foams found very similar velocities of sound, significantly higher than for the other types of foams, in which Wood's law is verified. As attenuation is strongly frequency dependent, comparison between the different studies is more delicate. The attenuation per wavelength  $\alpha\lambda = \alpha v/f$  (where  $f$  is the frequency) seems to be a decreasing function of the frequency.

By measuring the attenuation on a coarsening Gillette foam, Mujica and Fauve observed that  $\alpha\lambda \sim R^2 f$ . It seems that this law does not extend to low frequencies: our measurements with Gillette at 0.7 kHz give indeed an attenuation per wavelength twice larger than in Daugeilaite's experiment at 37 kHz, whereas the  $R^2 f$  law would predict a ratio 1/25.

## C Liquid fraction gradient and its effect on the acoustic measurements

Due to gravity, a gradient of liquid fraction is expected to be present within the foam. At equilibrium, it has been shown that the liquid fraction profile can be accurately predicted if the capillary length, the total liquid fraction in the foam, and the Sauter mean radius of the bubbles can be determined [19]. Figure 6 reports the calculated profiles (see inset) for two of our SDS foams: SDS 10%A ( $\Phi = 11\%$ ,  $R_{32} = 36 \mu\text{m}$  and  $d = 1.9 \text{ cm}$ ) and SDS 20%B ( $\Phi = 23\%$ ,  $R_{32} = 46 \mu\text{m}$  and  $d = 1.8 \text{ cm}$ ). For the dryer foam, the liquid fraction is found to be almost homogeneous (from 12% to 10%, from bottom to top). However, for the wetter sample, a significant gradient exists (28 to 19%).

From these profiles, we can calculate the input admittance of the sample by modelling it as a multiple layer medium [20], with air on top ( $x = 0$ ) and an infinitely rigid backplate at the bottom ( $x = d$ ). Following the same analysis procedure as for the experimental data, we can then extract the velocity and density one would measure from this calculated admittance. Figure 6 shows the comparison between these simulated results and the actual experimental measurements. It appears that the existence of a liquid fraction gradient does lead to an acoustically measured density that decreases with frequency. However, the dependence is not as strong as in the experiments. Furthermore, the calculated density gradient is probably over-estimated because it corresponds to an equilibrium state, whereas the measurement is done quickly after the filling of the tube. Density gradient might play a role in the acoustic measurements of  $\rho$  but further experimental studies will be necessary to investigate this point.



**Fig. 6.** For two SDS samples, the experimental values found for  $\rho$  and  $v$  are compared to what is expected when the density profile is accounted for (inset).

## D Effect of the position of the air-sample interface

If the air-sample interface is not at  $x = 0$  but at  $x = x_0$  (see Fig. 1c), the new relationship between the measured reflection and the impedance is

$$\frac{Z_0}{Z} = \frac{i}{\tan k(d - x_0)} \times \frac{1 - \mathcal{R}e^{-2ik_0x_0}}{1 + \mathcal{R}e^{-2ik_0x_0}}. \quad (6)$$

It has two consequences on the analysis described in Section 3:

- The sample thickness should be taken as  $d - x_0$  rather than  $d$ . This is actually the main source of uncertainty

**Table 2.** Comparison of the present study with previous acoustical measurements on liquid foams.

Authors	setup	foam	phase velocity	attenuation	frequency	average radius
Orenbackh and Shushkov [5]	Shock tube	$\Phi = 5\%$ , air + water + unknown surfactant	$v = 50$ m/s	$\alpha = 3.5 \text{ m}^{-1}$ $\alpha\lambda = 1.7$	$\sim 0.1$ kHz	$\sim 100 \mu\text{m}$
Mujica and Fauve [9]	Transmission with moving receiver	$\Phi = 8\%$ , Gillette (regular)	$v = 65$ m/s	$\alpha = 115 \text{ m}^{-1}$ $\alpha\lambda = 0.20$	37 kHz	
Shreiber et al. [6]	Shock tube	$\Phi = 5\%$ , air + expandol solution	$v = 48$ m/s	$\alpha = 5.5 \text{ m}^{-1}$ $\alpha\lambda = 2.6$	$\sim 0.1$ kHz	100-200 $\mu\text{m}$
Daugelaite [14]	Transmission with fixed receiver	$\Phi = 7\%$ , Gillette (sensitive)	$v = 60$ m/s	$\alpha = 200 \text{ m}^{-1}$ $\alpha\lambda = 0.32$	37 kHz	15 $\mu\text{m}$
Ben Salem et al. [11]	Transmission with fixed receiver	$\Phi = 7\%$ , Gillette	$v = 60$ m/s		40 kHz	15 $\mu\text{m}$
Present paper	Impedance tube	$\Phi = 7\%$ , Gillette (sensitive)	$v = 60$ m/s	$\alpha = 9 \text{ m}^{-1}$ $\alpha\lambda = 0.77$	0.7 kHz	22 $\mu\text{m}$
		$\Phi = 5\%$ , air + $C_2F_6$ in SDS + xanthane	$v = 50$ m/s	$\alpha = 8 \text{ m}^{-1}$ $\alpha\lambda = 0.67$	0.6 kHz	38 $\mu\text{m}$

when we measure  $v$ ,  $\alpha$  and  $\rho$ ; errorbars in Fig. 4 were calculated from the  $\pm 0.5$  mm accuracy of our thickness measurement.

- There is an additional  $2k_0x_0$  phase shift in the reflection coefficient, because the length of propagation in air is larger (or shorter, if  $x_0 < 0$ ). As  $x_0$  is usually small compared to the wavelength, the phase shift is small and only affects the imaginary part  $Z_0/Z^*$ . This is why the analysis procedure we propose relies on the real part of the admittance.

This sensitivity to the air-sample interface position is a limitation of the technique for time resolved measurements. Indeed, as the liquid foam is ageing,  $d$  generally increases (due to gas diffusion), which has a strong effect on the acoustic measurements, thus masking effects that could be due to finer structure changes. An improvement would be to add a membrane at  $x = 0$  that would be stiff enough to block the foam, but thin enough to be acoustically transparent.

## E Derivation of equations (5)

This appendix gives details upon the analysis of Eq. (4) to find the positions and amplitudes of the peaks. Let us recall that when condition  $k''d \ll 1$  is satisfied, Eq. (3) reduces to

$$\frac{Z_0}{Z^*} = -i \frac{Z_0}{\omega\rho} (k' + ik'') \frac{\tan(k'd) + ik''d}{1 - ik''d \tan(k'd)}. \quad (7)$$

A maximum of the real part of this formula is reached when  $k'd = \pi/2 + n\pi$  ( $\tan k'd \rightarrow \pm\infty$ ). The velocity can thus be calculated by the frequency of this maximum (Eq. (5a)). This maximum  $M_n = Z_0 k' / (\omega\rho k''d)$  depends on the velocity ( $k'$ ), the attenuation ( $k''$ ), and the density ( $\rho$ ). Providing that the attenuation is determined,  $M_n$  can thus give access to the density (Eq. (5b)).

To determine the attenuation, one can analyse Eq. (7) close to the peak :  $k'd = \pi/2 + n\pi + \epsilon$ , which gives  $\tan k'd \sim$

$-1/\epsilon$ . A minimum of the imaginary part of the admittance is found for  $\epsilon = -k''d$ , followed by a maximum for  $\epsilon = +k''d$ . The distance between these two extrema thus give access to the attenuation (Eq. (5c)).

Note that the density is supposed to be real in our analysis. This is an approximation: it has been rigorously deduced using homogenisation theory that the effective acoustic density in a visco-thermal fluid is a *complex*, frequency-dependent quantity [21, 22, 3]. However, we expect the imaginary part of  $\rho$  to be small compared to its real part, bringing only a negligible correction to our results.

## F Models

We briefly present two theoretical models whose predictions can be compared to our experimental results. The first one is a generic model for acoustics in two-phase systems (Wood), whereas the other one was specifically developed for liquid foams by Goldfarb, Shreiber and Vafina (GSV).

### F.1 Wood model

Wood's law [7] (also known as the mixture law) is based on the effective density  $\rho_{\text{eff}}$  and effective compressibility  $\chi_{\text{eff}}$  of the medium, from which the effective wavenumber  $k$  can be calculated:  $(k/\omega)^2 = \rho_{\text{eff}}\chi_{\text{eff}}$ , where  $\omega$  is the angular frequency. The effective density is given by

$$\rho_{\text{eff}} = \Phi\rho_\ell + (1 - \Phi)\rho_g \simeq \Phi\rho_\ell, \quad (8)$$

where  $\rho_\ell$  and  $\rho_g$  are the mass density of the liquid and the gas, respectively. For the compressibility, one can consider a large volume  $V$  that contains  $N$  bubbles of radius  $R$  :

$$V = N \frac{4}{3} \pi R^3 + V_\ell, \quad (9)$$

where  $V_\ell$  is the volume of the liquid. Then, by definition of the effective compressibility ( $\chi_{\text{eff}} = -(1/V)\partial V/\partial P$ ), one obtains:

$$\chi_{\text{eff}} = -3(1 - \Phi) \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial P} + \Phi \chi_\ell. \quad (10)$$

One then needs to determine how the bubbles react when they are submitted to a pressure change. To a first approximation only the compressibility of the gas matters, which leads to an equation similar to equation (8). As bubble dynamics have been extensively studied, a better solution can be easily obtained, for instance by taking the linearized Rayleigh-Plesset equation [23]. It leads to

$$\left(\frac{k}{\omega}\right)^2 = \frac{\rho_\ell \Phi (1 - \Phi)}{\kappa P_0 + \frac{2\sigma}{R_0}(\kappa - 1/3) - \frac{\omega^2 \rho_\ell R_0^2}{3} - \frac{4i\eta\omega}{3}}, \quad (11)$$

where the density of the gas and the compressibility of the liquid have been neglected. In equation (11),  $\sigma$  is the surface tension,  $P_0$  the ambient pressure,  $\eta$  the viscosity of the liquid,  $R_0$  the equilibrium radius of the bubbles, and  $\kappa$  the complex polytropic exponent for the thermal transformations of the gas, given by [24]

$$\kappa = \frac{\gamma}{1 - 3(\gamma - 1) \frac{1 - [(1+i)R_0/\ell_{\text{th}}] \coth[(1+i)R_0/\ell_{\text{th}}]}{[(1+i)R_0/\ell_{\text{th}}]^2}}, \quad (12)$$

with  $\gamma$  the ratio of the specific heat for the gas, and  $\ell_{\text{th}} = \sqrt{2D_{\text{th}}/\omega}$  the thermal length ( $D_{\text{th}}$  is the gas thermal diffusion coefficient).

For the range of bubble radii and frequencies investigated in our experiment, surface tension and inertia terms can be neglected in equation (11).<sup>4</sup> Thus, the real part of  $\kappa$  being very close to 1, equation (1) is recovered.

Equation (11) accounts for two sources of dissipation of the acoustic energy: thermal losses (imaginary part of  $\kappa$ ) and viscous losses (term with viscosity  $\eta$ ). As pointed out by Mujica and Fauve [9], thermal losses dominate over the viscous ones if  $\eta$  is close to the viscosity of water. Note that this extended version of Wood law gives the same dispersion relation as Waterman and Truell [25].

## F.2 GSV model

In the model proposed by Golfarb and coworkers [26,27] the particular structure of the foam is taken into account. From the thermal point of view, it consists in acknowledging the smallness of the volumes of water between the air bubbles, which makes arguable the status of infinite thermal source given to the liquid phase in Wood's model. In practice, this effect brings only small changes to the dispersion relation. On the other hand, the structure of the foam modifies significantly the predicted viscous losses. Indeed, instead of the bulk viscosity of the liquid, one needs to consider the resistance to liquid flows that exists in the

network of liquid channels. In analogy to flows in porous media, one can use the Darcy law and introduce a permeability  $K$ . A good approximation to GSV prediction can be recovered by changing  $\eta$  into  $\eta(1 + \Phi R_0^2/4K)$  in equation (11). GSV model takes  $K = 3.5 \times 10^{-3} R_0^2 \Phi^2$  to relate the permeability to the structure of the foam, a relation very close to the channel-dominated law which is known to give a good order of magnitude for liquid foams [28].<sup>5</sup> The effective viscosity experienced by a bubble oscillating in a liquid foam would thus be much higher than the simple viscosity of the liquid phase considered in Wood's model ( $\eta$  is multiplied by a factor of about  $70/\Phi$ ).

## F.3 Comparison with experiments

For comparison with experimental data (Fig. 7), one needs to take the polydispersity into account, and determine the thermal and mechanical parameters of the media. For Wood's model, polydispersity is taken into account by letting  $N$  depend on  $R$  in Eq. (9):  $N(R)$  being given by the measured histogram. In the case of GSV model, the mean radius was considered (see Table 1). For both models, the following thermal parameters were estimated [29]:  $\gamma = 1.1$ ,  $D_{\text{th}} = 8 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$  for air saturated with  $C_6F_{14}$  (SDS A-samples),  $\gamma = 1.2$ ,  $D_{\text{th}} = 12 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$  for air partially saturated with  $C_6F_{14}$  (SDS B-samples), and  $\gamma = 1.2$ ,  $D_{\text{th}} = 5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$  for Gillette samples. The viscosity of water was taken ( $\eta = 10^{-3} \text{ Pa.s}$ ) for both SDS and Gillette samples. This is a good approximation for Gillette [30]. On the other hand, since it contains xanthane, the SDS foaming solution we used is probably more viscous. Measurements in a rheometer showed that its viscosity was decreasing with frequency (as expected for a shear-thinning fluid), with a value of  $10^{-2} \text{ Pa.s}$  at 10 Hz, for a strain ranging from 0.1 to 10%. As the acoustic frequencies we used are two orders of magnitude higher, taking the viscosity of water seems a reasonable order of magnitude.

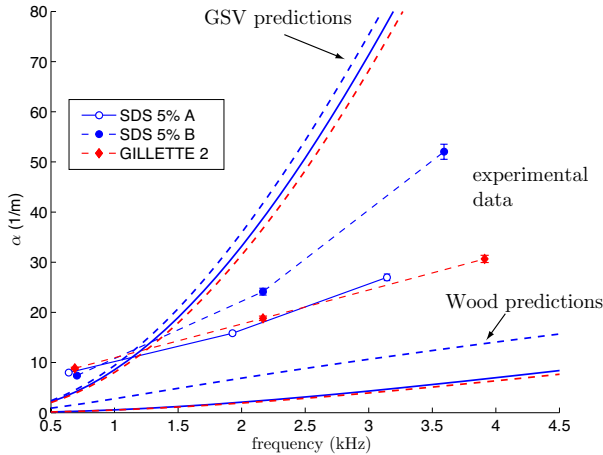
For the sake of clarity, we show comparison for three samples only, in Fig. 7: the two SDS at  $\Phi = 5\%$  and one of the Gillette samples. Wood's model, for which only thermal losses are significant, predicts attenuation that are lower than what is measured, but the relative attenuation from one sample to the other is well predicted: SDS B attenuates more than the other two. The same observations can be made for the five other samples. Contrary to Wood's model, GSV model estimates that viscous losses are significant, due to the liquid flowing through a network of narrow channels. As shown in Fig. 7, it seems to over-estimate the attenuation. Our experimental results thus indicate that a precise model for the attenuation of sound in liquid foams is still to be found.

Note that in the impedance tube, an additional source of attenuation can arise, due to dissipation on the wall of the tube. This attenuation is given by Kirchhoff law [13] and it is proportional to the diffusive length for thermal

<sup>4</sup> For the following typical values:  $\sigma = 40 \text{ mN/m}$ ,  $R_0 = 20 \mu\text{m}$ , and  $\omega/2\pi = 1 \text{ kHz}$ ,  $2\sigma/R_0 \simeq 3 \times 10^3 \text{ Pa}$  and  $\omega^2 \rho_\ell R_0^2/3 \simeq 5 \text{ Pa}$ , both negligible compared to  $\text{Re}(\kappa)P_0 \simeq 10^5 \text{ Pa}$ .

<sup>5</sup> We corrected what we believe to be an error in eq. (16) of reference [27], in which an extra  $\Phi$  appears in factor of  $\eta$ , and the permeability law scales as  $\Phi^3$ .

and/or viscous exchanges. As this length is inversely proportional to the square root of the frequency, Kirchhoff attenuation is stronger at low frequency. It could explain the fact that the experimental attenuation does not seem to reach zero at zero frequency (see Fig. 7).



**Fig. 7.** Comparison between the measured and predicted attenuation for three samples.

## References

1. D. Weaire and S. Hutzler. *The Physics of Foams*. Clarendon Press, Oxford, 1999.
2. I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Hohler, O. Pitois, and A. Saint-Jalmes. *Les mousses : structure et dynamique*. Belin, in french, 2010.
3. J.F. Allard and N. Atalla. *Propagation of Sound in Porous Media*. Wiley, 2009.
4. A. S. Dukhin and P. J. Goetz. Acoustics and electroacoustic spectroscopy for characterizing concentrated dispersion and emulsions. *Advan. Colloid Interface Sci.*, 92, 2001.
5. Z. M. Orenbakh and G. A. Shushkov. Acoustical characteristics of water-air foams. *Acoust. Phys.*, 39:63, 1993.
6. I. Shreiber, G. Ben-Dor, A. Britan, and V. Feklistov. Foam self clarification phenomenon: an experimental investigation. *Shock Waves*, 15:199, 2006.
7. A. B. Wood. *A Textbook of sound*. Bell, London, 1932.
8. V. V. Zamashchikov and N. A. Kakutkina. Experimental investigations of the acoustical properties of foams. *Sov. Phys. Acoust.*, 37:248, 1991.
9. N. Mujica and S. Fauve. Sound velocity and absorption in a coarsening foam. *Phys. Rev. E*, 66:021404, 2002.
10. J. Ding, F.W. Tsaor, A. Lips, and A. Akay. Acoustical observation of bubble oscillations induced by bubble popping. *Phys. Rev. E*, 75:041601, 2007.
11. I. Ben Salem, R.-M. Guillermic, C. Sample, V. Leroy, A. Saint-Jalmes, and B. Dollet. Propagation of ultrasound in aqueous foams: bubble size dependence and resonance effects. *Soft Matter*, 9:1194, 2013.
12. J. Pierre, F. Elias, and V. Leroy. A technique for measuring velocity and attenuation of ultrasound in liquid foams. *Ultrasonics*, 53:622, 2013.
13. T.D. Rossing. *Springer Handbook of Acoustics*. Springer Verlag, 2007.
14. D. Daugeleite. *Time Dependent Studies of Foam Stability Using Image Analysis, Electrical Resistivity and Ultrasound*. PhD thesis, University of Manitoba, 2011.
15. K.C. Symers. The relationship between the covalent structure of the xanthomonas polysaccharide (xanthan) and its function as a thickening, suspending and gelling agent. *Food Chem.*, 6:63, 1980.
16. J. Sauter. Die Grössenbestimmung der in Gemischnebeln von Verbrennungskraftmaschinen vorhandenen Brennstoffteilchen. *VDI-Forschungsheft*, 279, 1926.
17. ISO. Determination of sound absorption coefficient and impedance in impedance tubes. ISO 10534-2, International Organization for Standardization, Geneva, Switzerland, 2002.
18. A. F. Seybert and D. F. Ross. Experimental determination of acoustic properties using a two-microphone random excitation technique. *J. Acoust. Soc. Am.*, 61:1362, 1977.
19. A. Maestro, W. Drenckhan, E. Rio, and R. Hohler. Liquid dispersions under gravity: volume fraction profile and osmotic pressure. *Soft Matter*, 9:2531, 2013.
20. L. M. Brekhovskikh. *Waves in Layered Media*. Academic, New York, 1960.
21. J. L. Auriault C. Boutin and C. Geindreau. *Homogenization of coupled Phenomena in Heterogenous Media*. John Wiley and Sons, 2009.
22. J. L. Auriault, L. Borne, and R. Chambon. Dynamics of porous saturated media, checking of the generalized law of darcy. *J. Acoust. Soc. Am.*, 77:1641–1650, 1985.
23. A. Prosperetti. Nonlinear oscillations of gas bubbles in liquids: steady-state solutions. *J. Acoust. Soc. Am.*, 56:878, 1974.
24. A. Prosperetti, L. A. Crum, and K. W. Commander. Nonlinear bubble dynamics. *J. Acoust. Soc. Am.*, 83, 1988.
25. P. C. Waterman and R. Truell. Multiple scattering of waves. *J. Math. Phys.*, 2:512, 1961.
26. I. I. Goldfarb, I. R. Schreiber, and F. I. Vafina. Heat transfer effect on sound propagation in foam. *J. Acoust. Soc. Am.*, 92:2756, 1992.
27. I. I. Goldfarb, Z. Orenbakh, I. R. Schreiber, and F. I. Vafina. Sound and weak shock wave propagation in gas-liquid foams. *Shock Waves*, 7:77, 1997.
28. E. Lorenceau, N. Louvet, F. Rouyer, and O. Pitois. Permeability of aqueous foams. *Eur. Phys. J. E*, 28:293, 2009.
29. A. L. Lindsay and L. A. Bromley. Thermal conductivity of gas mixtures. *Industrial and Engineering Chemistry*, 42:1508, 1950.
30. A. D. Godal and D. J. Durian. Shear-induced “melting” of aqueous foams. *J. Coll. Int. Sci.*, 213:169–178, 1999.



## 4.2 Technique de mesure à hautes fréquences [Article 9]

Le tube d'impédance est limité en fréquence, parce que longueur d'onde doit être grande devant le diamètre du tube pour assurer la génération d'ondes planes. Pour atteindre des fréquences supérieures à 6 kHz, nous avons développé une autre technique dont le principe et les performances sont exposés dans l'article 9, paru dans la revue *Ultrasonics* en 2013 [76].<sup>10</sup>

L'idée est d'utiliser un principe de mesure classique en ultrason : on mesure l'amplitude et de le temps de vol d'une impulsion acoustique qui traverse l'échantillon. En comparant à une mesure de référence, on peut en extraire la vitesse et l'atténuation des ultrasons dans le milieu. C'est exactement le même genre de technique que dans l'article 1 sur les milieux bulleux. Mais les mousses étant plus proches acoustiquement de l'air que de l'eau, il faut adapter cette méthode à des ondes aériennes. Et se pose également le problème d'obtenir un échantillon de mousses d'épaisseur contrôlée.

Il existe depuis quelques années des transducteurs ultrasonores large bande pour les ondes acoustiques aériennes. Ceux que nous avons utilisés, les BATs (voir figure 4.11), fonctionnent entre 60 kHz et 1 MHz, avec une fonction de réponse remarquablement plate sur cette gamme. Cela nous a permis d'explorer des fréquences très différentes avec le même dispositif. Le protocole que nous avons développé pour obtenir une mousse d'épaisseur contrôlée est illustré sur la figure 4.12. Il implique de coincer la mousse entre deux films d'épaisseur très faible, afin de perdre le moins de signal possible lors de la transmission des ultrasons. On a pu vérifier que la transmission à travers ces films se comportait bien comme prédit par une simple loi de rupture d'impédance (voir les figures 4 et 7 de l'article 9), sans influence sensible de la façon dont on les avait collés.

L'article 9 aborde également le problème de la mesure de phase, qui est toujours à  $2\pi$  près. Cette ambiguïté a des répercussions sur la détermination de la vitesse de phase, comme illustré sur les figures 9 et 10 avec des données synthétiques. Avoir des mesures sur une gamme de fréquences large est utile parce qu'on peut alors généralement lever l'ambiguïté en utilisant le fait que le déphasage doit tendre vers 0 pour une fréquence nulle.

Un dernier problème demeure dans la technique de mesure par transmission. En principe, pour caractériser complètement l'échantillon, il faut déterminer 4 grandeurs, a priori dépendantes de la fréquence : les parties réelles et imaginaires des densité et compressibilité du milieu effectif. Avec la transmission complexe, on ne dispose que de deux mesures. Il faudrait donc compléter par une mesure de réflexion, ce qui n'est pas possible facilement dans notre système, notamment parce que, contrairement aux transducteurs piézoélectriques, notre

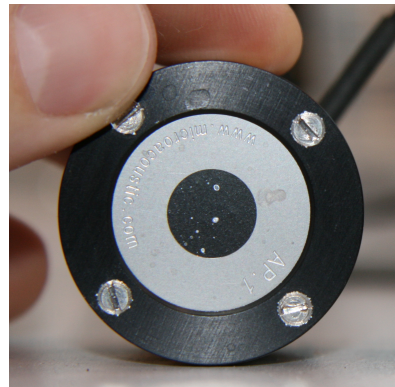


FIGURE 4.11 – Les mesures à hautes fréquences ont été possibles grâce à un transducteur aérien large bande. La surface active (partie centrale sombre) est une membrane de 1 cm de diamètre.

10. Encore une erreur à signaler : dans l'équation (1) de l'article 9, il faut lire  $U/U_\ell$  au lieu de  $U_\ell/U$ .

émetteur ne peut pas être utilisé en récepteur. On a donc besoin de faire une hypothèse sur le comportement du milieu pour pouvoir passer de la mesure de transmission complexe à celle de la vitesse et de l'atténuation. Dans l'article 9, on a fait l'hypothèse que la densité effective du milieu suivait la loi de mélange, ce qui nous paraissait raisonnable au vu de notre expérience sur les milieux bulleux. Mais on verra avec l'article 10 que cette hypothèse n'était sans doute pas la bonne.

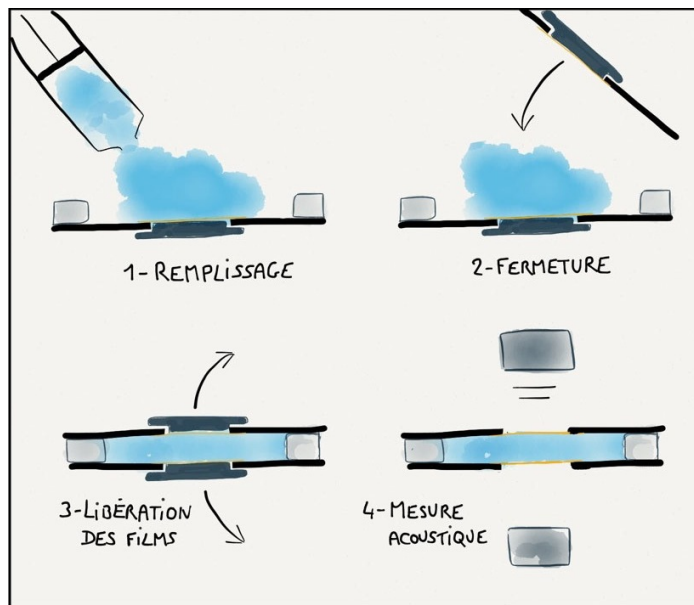


FIGURE 4.12 – On enferme la mousse entre deux plaques rigides, percées de trous circulaires (diamètre de 7 cm) fermés par de fines membranes de mylar (en jaune sur le dessin). Pour protéger ces fines parois et les empêcher de se déformer, des caches rigides sont utilisés lors des phases de remplissage et de fermeture. Lorsqu'on enlève ces caches, la mousse est coincée entre deux films fins, sur une épaisseur déterminée par la hauteur des entretoises.

Un avantage de ce dispositif expérimental par rapport au tube d'impédance est le fait que la mousse soit enfermée, sans possibilité de changer d'épaisseur. On peut alors profiter du vieillissement pour suivre comment le comportement acoustique de la mousse dépend de la taille des bulles. On voit par exemple sur la [figure 12](#) que la vitesse suit bien la loi de Wood quand la mousse est jeune, *i.e.* pour de petites bulles, mais devient dispersive et atteint une valeur de l'ordre de 200 m/s quand les bulles grossissent. L'article 10, présenté dans la section suivante, revient plus en détail sur ces mesures.

# A technique for measuring velocity and attenuation of ultrasound in liquid foams

J. Pierre<sup>1</sup>, F. Elias<sup>2</sup>, V. Leroy<sup>1</sup>

1. *Laboratoire MSC, Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), Paris, France*

2. *Laboratoire MSC, Université Pierre et Marie Curie, CNRS (UMR 7057), Paris, France*

---

## Abstract

We describe an experimental setup specifically designed for measuring the ultrasonic transmission through liquid foams, over a broad range of frequencies (60-600 kHz). The question of determining the ultrasonic properties of the foam (density, phase velocity and attenuation) from the transmission measurements is addressed. An inversion method is proposed, tested on synthetic data, and applied to a liquid foam at different times during the coarsening. The ultrasonic velocity and attenuation are found to be very sensitive to the foam bubble sizes, suggesting that a spectroscopy technique could be developed for liquid foams.

**Keywords:** Liquid foams, ultrasonic setup, air-coupled ultrasound

---

## 1. Introduction

Acoustic spectroscopy [1, 2] is a powerful tool to determine the particle size distribution in a dispersed media. It consists in measuring the effective attenuation and velocity of sound in the medium, over a broad range of frequencies (typically 1-100 MHz), and fitting those quantities with the appropriate model in order to obtain the particle size distribution. This technique gives real time measurements and is not destructive. It does not require dilution of the sample, and recent developments suggest that it could also give information on the local rheology of the medium [3].

Acoustic spectroscopy is routinely used for dispersions of liquid droplets or solid particles, and commercial apparatuses are on the market for these kinds of media. Even gas bubbles can be inspected when their concentration is not too high [4, 5]. But there is no spectroscopy technique available for liquid foams, even though those materials represent an important challenge in an increasing number of industrial areas (food, cosmetic or petroleum industry). Absence of ultrasonic spectroscopy can probably be explained by two difficulties that arise when dealing with the acoustics of liquid foams. First, the models used for other media are not directly applicable to liquid foams. Specific models have been developed [6, 7], but they still need to be experimentally validated. Which leads to the second problem: acoustic measurements in liquid foams are not straightforward. In particular, the measurements that exist in the literature [8, 9, 10, 11, 12] do not cover a range of frequencies broad enough to measure a *dispersion* of the acoustical properties, the key feature for extracting the size distribution.

In this article, we propose a new experimental setup for measuring the effective velocity and attenuation of ultra-

sound in liquid foams from 60 to 600 kHz.

## 2. Experimental setup

### 2.1. Ultrasonic setup

Our setup is based on the transmission of acoustic pulses through the sample to be characterized. As liquid foams are mainly composed of air, their acoustic impedance is low. Usual ultrasonic techniques that use piezoelectric transducers, and water as a coupling medium, face an impedance mismatch issue when dealing with such media. Air-borne acoustic waves thus seem more appropriate in terms of the amount of acoustic energy one can transmit through the sample. Moreover, the new generation of micromachined capacitance air transducers [13] does not suffer from the bandwidth limitation that has made pulse techniques impossible for air-borne ultrasound. An additional benefit of working with air as coupling medium is to suppress the problem of water infiltration inside the sample, an issue particularly important for liquid foams.

Figure 1 shows a scheme of the ultrasonic setup. A function waveform generator, controlled by a computer, generated a gaussian pulse, amplified by a power amplifier (up to 150 V for the most attenuating samples) and transmitted to the emitting air transducer (BAT-1, MicroAcoustic). The ultrasonic pulse then propagated through the sample before being received by an other transducer, pre-amplified (40 dB) and recorded by a digital oscilloscope connected to the computer. Two gaussian pulses, centered around 150 kHz and 400 kHz, allowed us to explore the complex transmission from 60 to 600 kHz. Note that we did not use the total bandwidth of the transducers because the attenuation was usually too high for frequencies higher than 600 kHz. Distance  $L$  between the transducers



and the cell was 9 cm, so that the cell was in the far-field of the transducers (the diameter of the active surface of the transducers was 1 cm).

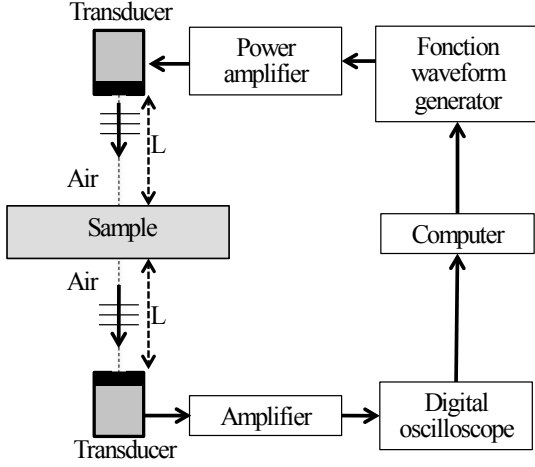


Figure 1: Scheme of the ultrasonic setup. A pair of broadband air-transducers measures the complex transmission through the sample from 60 to 600 kHz.

### 2.1.1. Design of the cell

Liquid foams are not solid, which means one cannot cut a well-defined slab of foam and put it in the ultrasonic beam. On the other hand, using solid walls to maintain the foam poses the problem of the impedance mismatch between the air and the walls. We designed a specific cell with very thin walls, depicted in figure 2. Circular holes with diameter  $D = 7$  cm were made in two plastic plates ( $18 \times 12$  cm<sup>2</sup>, 3 mm-thick) and covered with very thin PET (polyethylene terephthalate) films. The thickness of the films was chosen as small as possible ( $h \approx 3$   $\mu$ m) in order to make them transparent to air-borne ultrasound.

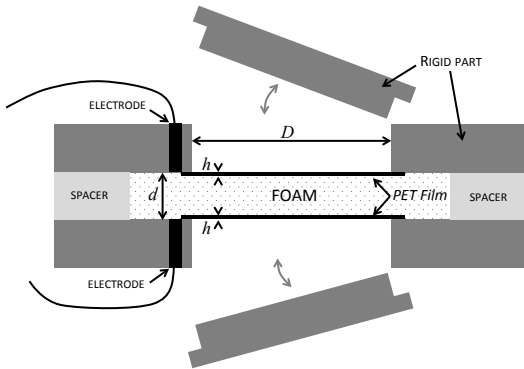


Figure 2: The liquid foam is contained in a thin-wall cell whose thickness  $d$  is well defined. Two rigid plates are used to rigidify the walls when the cell is being filled. A pair of electrodes is also included in the cell for electrical conductivity measurements, which give access to the liquid content of the foam.

Filling the cell was a critical task because thin films are flexible. Two solid plates that fitted exactly in the holes

were clamped onto the walls to rigidify them during the filling process (see figure 2). Then, the liquid foam was poured onto one of the walls, two spacers with the desired thickness  $d$  were placed on the edges, and the cell was closed with the second wall. The last step consisted in removing the rigid parts, making the cell ready for ultrasonic measurements. Note that the cell was placed horizontally to avoid a gradient of liquid fraction perpendicular to the ultrasonic beam. As liquid foams were found to be very attenuating for ultrasound, spacers were thin:  $1.1 \pm 0.02$  mm or even  $0.5 \pm 0.02$  mm for the most attenuating samples. However, it was checked that the diameters of the bubbles in the foam were smaller than  $d$  (see section 2.2.2), ensuring a three-dimensional structure for the foam. Note that a benefit of the small thickness was that filling the cell did not require a large volume of foam (typically 8 mL were enough).

### 2.1.2. Data processing

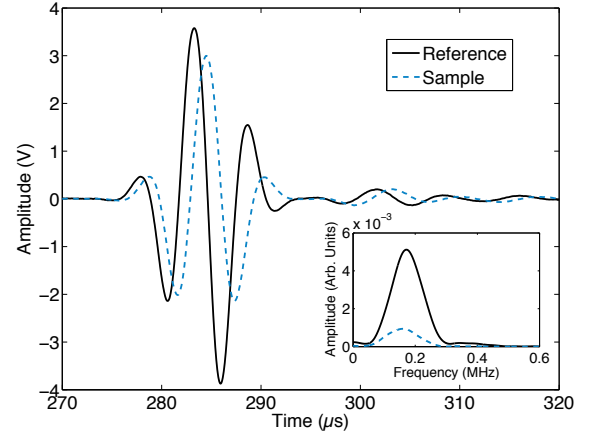


Figure 3: Measured signals through air (reference, solid line) and through one PET film (sample, dash line), for a gaussian pulse centered at 150 kHz. Inset: Fourier transforms of the two signals.

As an illustration of the data processing, we show the acquisition of the transmission through one PET film. Figure 3 shows the two signals recorded by the oscilloscope without (Reference) and with (Sample) the film placed between the two transducers, for a gaussian pulse centered at 150 kHz. Note that even though the film is not perfectly transparent to ultrasound, a significant part of the energy is transmitted. The transit time is strongly affected: the pulses have a quadrature phase relationship.

The ratio between the Fourier transforms of the two temporal signals gives the complex transmission through the sample:  $T = T_{SAM}/T_{REF}$ , where  $T_{REF}$  and  $T_{SAM}$  are respectively the complex transmission without and with the sample. Figures 4a and 4b show the amplitude and the phase of  $T$  as functions of the frequency. Note that the time limits of a pulse are not always clear. For instance, in figure 3, one can wonder if the small bump in the signal around 305  $\mu$ s is part of the pulse, or a spurious

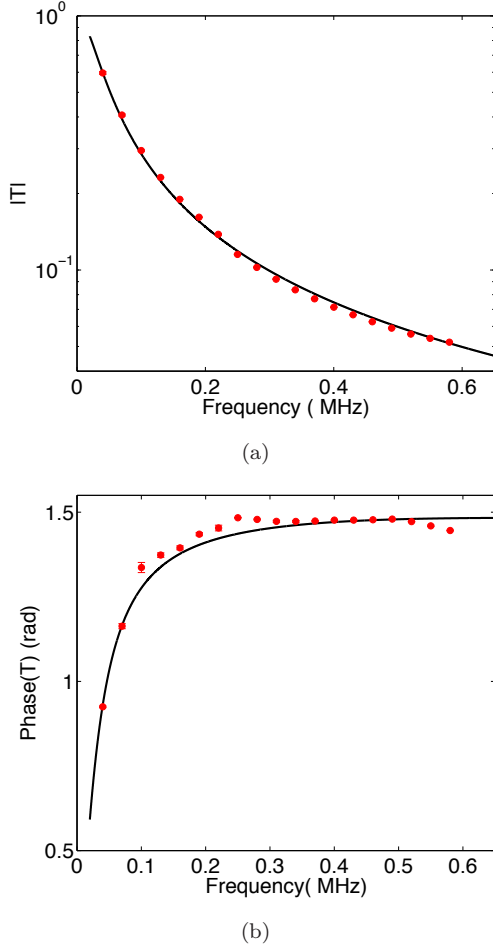


Figure 4: Transmission through one film. Amplitude (a) and phase (b) of the transmission coefficient are obtained by calculating the Fourier transforms of the signals shown in figure 3. Dashed lines correspond to the theoretical transmission through a film with thickness  $h = 3.1 \mu\text{m}$ .

signal. To solve this issue, we systematically made two different truncations: a short one that captured only the main pulse, and a broader one that included other small features. For the pulses of figure 3, the first truncation was 270 to 300  $\mu\text{s}$ , and the second one from 250 to 320  $\mu\text{s}$ . The differences between the two truncations appear as errorbars in the amplitude and phase of the transmission (very small in figures 4a and 4b because the signal over noise ratio was good).

## 2.2. Foam production and characterization

As the acoustic properties of liquid foams are known to strongly depend on their structure, we included other characterization techniques to the setup for measuring parameters such as the liquid fraction  $\Phi$  of the foam and the bubble size distribution. Liquid foams have been the subject of an extensive literature, and many experimental techniques for characterizing them have been developed [14]. The technique used for the production of the liquid foam is known to have a great influence on the struc-

ture of the final product. We used a very simple technique known as the “double-syringe” technique. In one syringe, one takes a volume  $V_\ell$  of liquid and completes with gas to a total volume  $V$ . Then the second syringe, empty, is connected to the first one and the mixture is pushed from one syringe to the other several times. With this simple process, the gas is sheared and divided into small bubbles. The size of the bubbles depend, among other parameters, on the size of the aperture that connects the two syringes. In our case, the syringes were connected with a standard female-female Luer Lock connector; the length and diameter of the cylindrical shearing zone were 16 mm and 4 mm, respectively. Note that the syringes should be rubber free, because rubber can limit the foamability of the solution.

For the foams presented in this article, the liquid phase was distilled water with 10 g/L of SDS (sodium dodecyl sulfate) and 0.5 g/L of xanthane. We used SDS as a surfactant because it gives a good foamability to the liquid, and xanthane because it increases the viscosity of the liquid phase, thus limiting the drainage of the foam [15]. The gaseous phase was air with traces of  $\text{C}_6\text{F}_{14}$  (perfluorohexane) to decrease its solubility, which slows down the coarsening of the foam [15].

### 2.2.1. Liquid fraction measurement

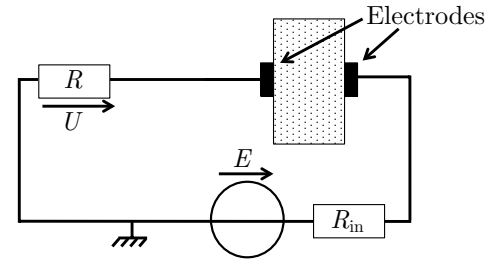


Figure 5: Electrical scheme of the conductivity setup. Measuring tension  $U$  when the cell is filled with liquid and when it is filled with foam gives the relative conductivity of the foam, which is related to its liquid fraction.

The advantage of the “double-syringe” technique is the relative control it offers on the liquid fraction of the foam, as one chooses the amount of liquid and gas taken to make the foam ( $\Phi = V_\ell/V$ ). However, with standard small syringes and without specific precautions, the uncertainties on the volumes are such that the actual liquid fraction can noticeably differ from the expected one. We measured the liquid fraction by weighting the foam and found that, typically, when we aimed at a liquid fraction of 10 %, the actual  $\Phi$  was between 7 and 13 %. In order to have a precise and *in-situ* determination of the liquid fraction we set up an electrical conductivity measurement [16, 17]. As shown in figure 2, two electrodes (5 mm in diameter) were included in the walls of the cell. They were placed as close as possible from the edge of the film (3 mm in practice), so that they probed the same part of the sample as the one probed by the ultrasonic beam. Figure 5 presents the scheme of the electrical setup. The generator is set on an

alternative tension of 1 kHz, with a voltage of  $E = 1$  V and the resistance of the circuit is  $R = 1.2$  k $\Omega$ . The relative conductivity of the foam  $\sigma_r$  is given by

$$\sigma_r = \frac{U_\ell}{U} \times \frac{E - U_\ell(1 + R_{\text{in}}/R)}{E - U(1 + R_{\text{in}}/R)}, \quad (1)$$

where  $R_{\text{in}}$  is the internal resistance of the generator,  $U$  the tension measured on the resistor when the foam is in the cell, and  $U_\ell$  the tension measured when the cell is filled with liquid. From the relative conductivity, liquid fraction  $\Phi$  is obtained thanks to the empirical law [17]:

$$\Phi = \frac{3\sigma_r(1 + 11\sigma_r)}{1 + 25\sigma_r + 10\sigma_r^2}. \quad (2)$$

For the liquid foam we present in this article, we aimed at a liquid fraction of 5 % and obtained  $\Phi = 6 \pm 0.5$  % according to the conductivity and weight measurements.

### 2.2.2. Bubble size measurement

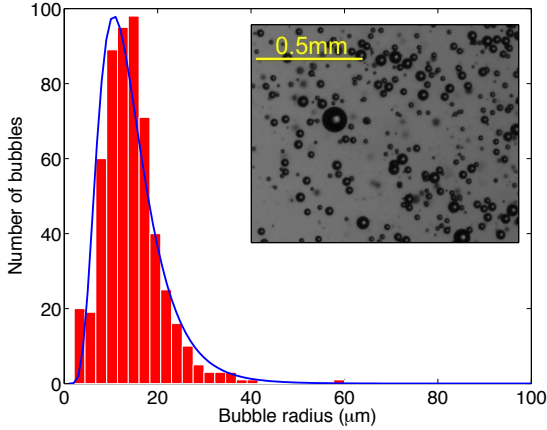


Figure 6: Image analysis of bubble rafts (see inset) gives the histogram of the bubble radii distribution. Here the distribution is fitted with a log-normal law (solid line); the median radius is 13  $\mu\text{m}$  and the polydispersity is 0.45.

Measuring the bubble size in a three-dimensional foam is very challenging. We adopted a quite intrusive method that consists in pouring a small volume of the foam onto the surface of the same liquid used for making the foam. One can then spread the bubbles in order to obtain a two-dimensional bubble raft, easy to image (see inset of figure 6). If it is assumed that the foam that remains in the syringe has the same time evolution than the one that has been put into the cell, this technique can even allow one to follow the evolution of the size distribution with time. Figure 6 shows an histogram of the bubble radii, obtained for our example foam at  $t = 0$ . It can be fitted by a log-normal law:

$$n(r) = \frac{n_{\text{tot}}}{r\epsilon\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\ln(r/r_0))^2}{2\epsilon^2}\right), \quad (3)$$

where  $n_{\text{tot}}$  is the total number of bubbles,  $r_0$  the median radius of the bubble, and  $\epsilon$  the log-normal standard deviation. Parameter  $\epsilon$  is an indication of the polydispersity of

the foam:  $\epsilon = 0.5$  means that there is a significant number of bubbles whose radius is half or twice the median radius.

## 3. Transmission measurements

### 3.1. Ultrasonic characterization of the cell

Being able to measure the acoustic properties of the foam contained in the cell requires a good knowledge of the cell itself. The first step is to measure the transmission through one film (see figure 4). As the impedance of PET is much larger than the one of air (see table 1), and the thickness of the film is small compared to the wavelength in air ( $\lambda \simeq 0.5$  mm at 600 kHz), the acoustic transmission through the film is well approximated by (see appendix Appendix A):

$$T_{\text{film}} \approx \frac{e^{i(k_p - k_a)h}}{1 - i\pi \frac{f\rho_p h}{Z_a}}, \quad (4)$$

where  $f$  is the frequency, and  $k$ ,  $Z$ ,  $\rho$  the wave numbers, acoustic impedances, and mass densities, respectively. Indices  $a$  and  $p$  refer to air and PET, respectively. As shown in figure 4, equation (4) fits the experimental data very well for  $h = 3.1$   $\mu\text{m}$ .

Medium	index	phase velocity	density
air	$a$	340 m/s	1.2 kg/m <sup>3</sup>
PET	$p$	2540 m/s	1400 kg/m <sup>3</sup>

Table 1: Physical parameters for air and PET.

The amplitude of transmission through the film decreases as frequency increases: at 600 kHz, only 6 % of the amplitude is transmitted through the film. This is a limitation of our setup for high-frequency measurements. Note that the phase of the transmission also depends on frequency (see fig. 4b) and tends toward  $\pi/2$  at high frequencies. It means that even though the film is very thin,  $T_{\text{film}}$  is not purely real, which is an important feature for the inversion procedure (see section 4).

To make sure the roles of the two films were well understood, we also measured the transmission through the empty cell. Figure 7 shows the amplitude and the phase of the transmission through this empty cell with a  $d = 1.1$  mm spacer. Multiple reflections occur and give rise to very clear Fabry-Pérot resonances. The experimental data are successfully compared with the theoretical prediction  $T_{\text{cell}}(k_a, \rho_a)$  (see appendix Appendix A), which means that the cell is well characterized and ready for being filled with foam. Note that the first peak of transmission through the empty cell is particular. Indeed, the Fabry-Pérot criterion for the resonance to occur can be simply written as  $k_a d = n\pi$  with integer  $n \geq 1$ , which gives frequencies of maxima for  $f_n = n \times 155$  kHz. It does not predict the first maximum which occurs at 37 kHz. This first maximum is

actually a signature of the non purely real reflection coefficient of the films, which brings an additional phase shift and changes the condition of resonance.

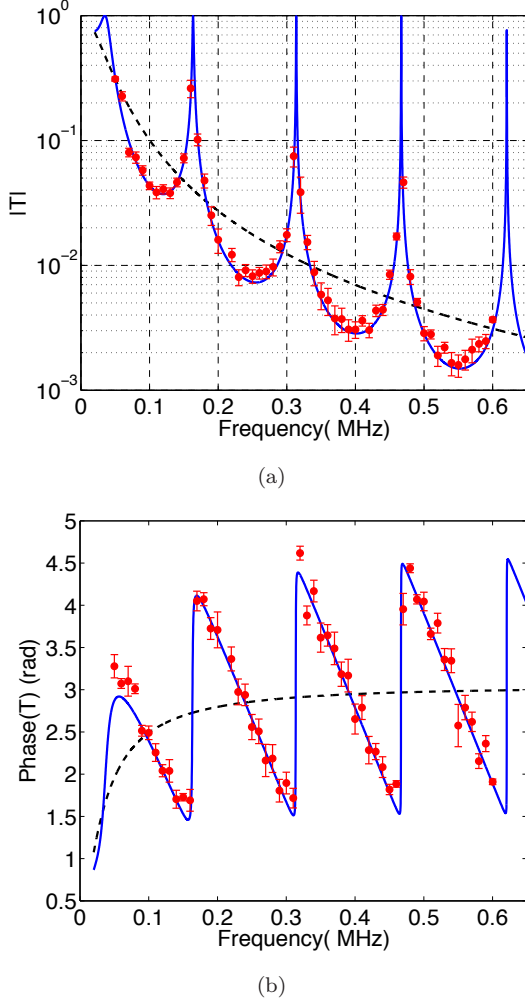


Figure 7: Transmission through the empty cell. Amplitude (a) and phase (b) of the complex transmission through the empty cell are shown. The circles are data points, the continuous lines the theoretical prediction, and the dashed lines the transmission predicted through two films with no multiple reflections.

### 3.2. Transmission through liquid foams

When the cell is filled with a liquid foam, the transmission does not show any Fabry-Pérot resonances (see figure 8), which is not a surprise given the high attenuation of ultrasound in liquid foams. We show results for a foam at two different ages, with a constant liquid fraction  $\Phi = 6\%$ . Note that the attenuation was so high that a thin cell was used ( $d = 0.5$  mm). Even with this precaution, the signal could not be measured above 180 kHz at  $t = 0$  min.

## 4. Data analysis

### 4.1. Principle

The analysis of the experimental data is an inversion problem: from the measurement of the complex trans-

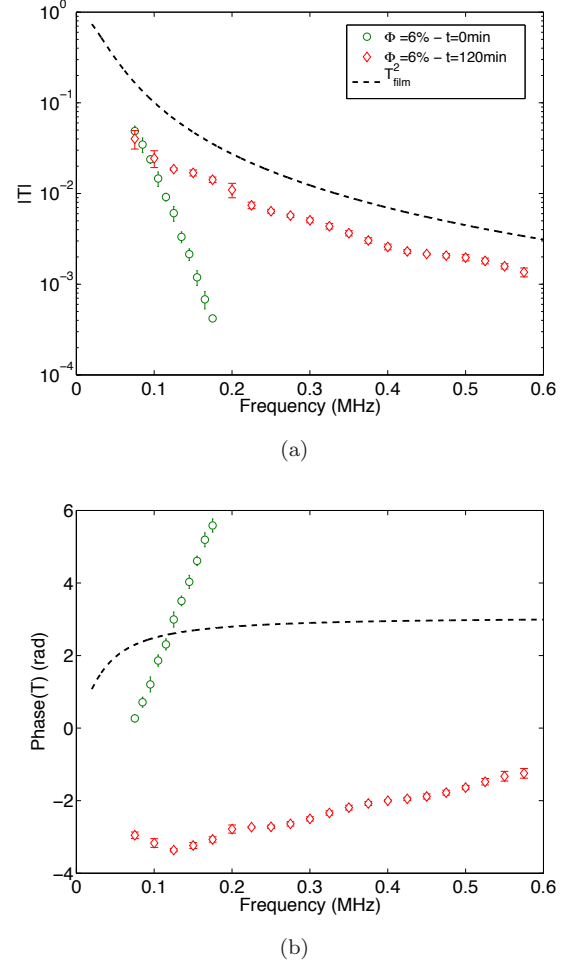


Figure 8: Transmission through liquid foams. Amplitude (a) and phase (b) of the transmission through the cell filled with the same liquid foam at two different ages are shown. For comparison, the transmission predicted through two films with no multiple reflections is reported with dashed lines.

mission through the cell, can we determine the velocity  $c$  and the attenuation  $\alpha$  of ultrasound in the medium? This is equivalent to determining the complex wavenumber  $k = \omega/c + i\alpha/2$ . As recalled in the appendix, the total transmission through the cell depends on the density and wavenumber in all the media involved, and on the thicknesses of the different layers. As the cell is well characterized, only 2 quantities are unknown:  $\rho$  and  $k$ , *i.e.* the density and the wavenumber for the medium that fills the cell. If we note  $T_{\text{exp}}$  the experimental transmission measured through the cell, the question is then to know whether we can find  $\rho$  and  $k$  such that  $T_{\text{cell}}(k, \rho) = T_{\text{exp}}$ .

A first simple approach is to consider that, as there is no multiple reflection in the liquid foam,  $T_{\text{cell}}(k, \rho)$  reduces to  $T_{\text{film}}^2 e^{i(k-k_a)d}$  because the acoustic wave just goes across the two films and the foam. This leads to

$$k = k_a + \frac{1}{id} \ln \left( \frac{T_{\text{exp}}}{T_{\text{film}}^2} \right). \quad (5)$$

However, the transmission through the film is modified by the presence of the foam. The actual transmission through the cell is given by (see appendix Appendix A)

$$T_{\text{cell}}(k, \rho) = \frac{4Z_a \rho \omega / k}{(Z_a + \rho \omega / k)^2} \times \frac{e^{i(k-k_a)d}}{\left[1 - ik_p h \left(\frac{Z_p}{Z_a + \rho \omega / k}\right)\right]^2}, \quad (6)$$

which is much more challenging to inverse. First, both  $\rho$  and  $k$  are involved in the equation, which means that one of them needs to be determined by another measurement. Let us assume that we know  $\rho$ . Even with this simplification,  $k$  cannot be extracted analytically from equation (6). We used an iterative process: the first guess  $k^{[0]}$  is given by eq. (5) and the iteration proceeds with

$$k^{[n+1]} = \frac{1}{id} \ln \left( \frac{T_{\text{exp}}}{T_{\text{cell}}(k^{[n]}, \rho) e^{-ik^{[n]}d}} \right). \quad (7)$$

Usually, 10 iterations were enough to obtain a good convergence.

#### 4.2. Test on synthetic data

We calculated  $T_{\text{cell}}(k, \rho)$  for different  $k$  and applied the inversion method to the synthetic data obtained. Convergence of the method was found to be excellent, providing that multiple reflections in the cell could be neglected (*i.e.*,  $ad$  should be large enough).

Figure 9 shows a typical result for a test medium with  $\rho = 50 \text{ kg/m}^3$ ,  $c = (30 + 500f) \text{ m/s}$  and  $\alpha = (2 + 8f) \text{ mm}^{-1}$ , where frequency  $f$  is in  $\text{MHz}$ . As a first step, we calculated the complex transmission through a fictive cell filled with the test medium (see appendix Appendix A). Amplitude and phase of the complex transmission through the cell are shown in figure 9. A second step consisted in applying the inversion method to those synthetic data, which gave back the actual velocity and attenuation (figure 10).

Note that, as for any phase measurements, the phase of the transmission is measured modulo  $2\pi$ , which can affect the value found for the attenuation and the velocity. As an example, figure 10 shows how the inversion is affected when a global  $2\pi$  phase shift is applied to the phase of the transmission. The attenuation is only slightly changed, but the velocity is significantly lowered. Determining the correct  $2\pi$  shift for the phase has always been a problem for ultrasonic velocity measurements [18]. In many cases, the ambiguity is resolved because one knows that the velocity should be within a reasonable limit, or because incorrect  $2\pi$  shifts lead to an unexpected dispersion. But for media such as liquid foams, many options give realistic results: both results in figure 10b look plausible, for example. The solution to the problem is found by noting that the phase of the transmission should tend to zero for zero frequency [18]. Then, providing that broadband measurements are available, one can unambiguously determine the correct phase (see figure 9b for example). However, it requires the assumption that the phase has a smooth behavior for frequencies below the lowest experimental frequency.

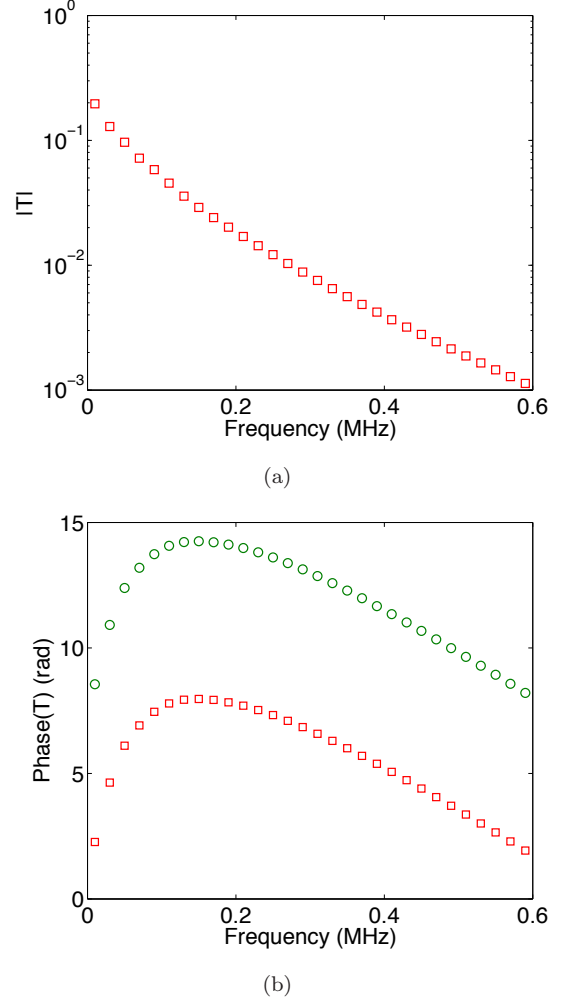


Figure 9: Synthetic data are generated by calculating the amplitude (a) and phase (b) of  $T_{\text{cell}}(k, \rho)$  for known values of  $k$  and  $\rho$ . The phase is known modulo  $2\pi$ . As an example, the calculated phase (rectangles) can be affected by a  $+2\pi$  shift (circles), resulting in a different result for the inversion (see text).

#### 4.3. Experimental results for liquid foams

As an illustration, we show that our technique allows us to follow the time evolution of the acoustical properties of a foam.

Applying the inversion method to the real data of figure 8 requires first to determine  $\rho$ . We took Wood's law [19] (also known as the mixture law), which assumes that the *effective* mass density is the same as the *actual* mass density:  $\rho = \Phi \rho_\ell + (1 - \Phi) \rho_g$ , where  $\rho_\ell$  and  $\rho_g$  are the mass densities of the liquid and gaseous phases, respectively. For the liquid foam presented in this article, the inversion was thus performed considering that the mass density was  $\rho = 60 \text{ kg/m}^3$ . Note that other models exist and predict that the effective density can be complex and frequency dependent [20].

As mentioned earlier, the phase is measured modulo  $2\pi$ . As can be seen in figure 8b, the measured phase at  $t = 0 \text{ min}$  needs a  $+2\pi$  shift in order to follow our pre-



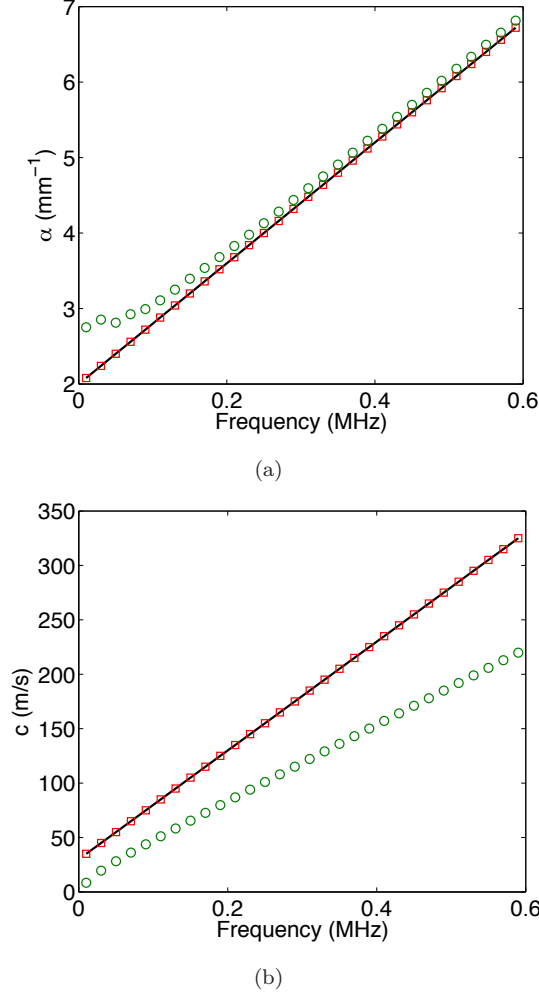


Figure 10: When the inversion method is applied to the synthetic data of figure 9, one can find back the attenuation (a) and phase velocity (b) in the test medium. Different results are obtained for a zero phase shift (rectangles) or a  $2\pi$  phase shift (circles). The true attenuation and velocity are shown in solid lines.

scription of a “zero phase at zero frequency”. Figure 11 brings a confirmation that this is the correct phase correction. Indeed, the inversion was applied for 0,  $+2\pi$  and  $+4\pi$  shifts. The  $0\pi$  shift can be ruled out because it gives a very dispersive behavior. The  $+4\pi$  shift gives a plausible result, but slightly more dispersive than the  $+2\pi$  shift. Dispersion is not the only criterion: the value of the phase velocity found with the  $+2\pi$  shift is in a close agreement with Wood’s prediction:  $c_{\text{Wood}} = \sqrt{100\kappa/\Phi/(1-\Phi)}$  for a gas at atmospheric pressure and a liquid with density of water, where  $\kappa = 1$  for isothermal transformations (solid line in Fig. 11) and  $\kappa = 1.4$  for adiabatic transformations (dashed line in Fig. 11). Other experiments at lower frequencies have found a velocity in liquid foams close to the isothermal Wood’s velocity [9, 11].

Figure 12 shows the attenuation and phase velocity obtained for the liquid foam from 0 to 120 min, *i.e.* as the bubbles were growing from  $13\mu\text{m}$  (see Fig. 6) to  $65\mu\text{m}$ .

Errorbars were estimated from the three sources of uncertainty: liquid fraction ( $\pm 0.5\%$ ), spacer thickness ( $\pm 20\mu\text{m}$ ), and accuracy of the transmission measurement (see errorbars in Fig. 8 for example). Even though the liquid content remains the same, the liquid foam shows very different ultrasonic behaviours as it ages. When the bubbles are small, attenuation is large and very dispersive, whereas the velocity is almost constant at about 40 m/s. Interestingly, when the bubbles grow, the attenuation becomes lower and the velocity is found to be dispersive, reaching a plateau at about 200 m/s for  $t = 120$  min. This dispersive behavior has never been observed in liquid foams. It suggests that the size of the bubbles is an important parameter for the acoustic properties of liquid foams.

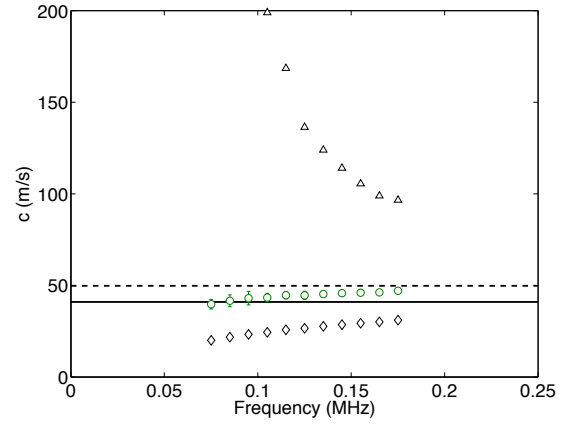


Figure 11: Phase velocity calculated from the experimental transmission of figure 8, using the inversion method for different “ $2\pi$ ” shift:  $0\pi$  (triangles),  $+2\pi$  (circles) and  $+4\pi$  (diamonds).

## 5. Conclusion

We have described a new experimental setup for measuring the ultrasonic transmission through liquid foams over a large range of frequencies (60-600 kHz). The ultrasonic setup was combined with conductivity measurements and optical observations that allowed us to characterize the liquid foam (liquid fraction and bubble size distribution). We have shown that, providing that the mass density of the foam was known, the velocity and attenuation of ultrasound in the foam could be deduced from transmission measurements. As an illustration of the technique, the acoustic properties of a foam at different ages were presented. The ultrasonic attenuation was found to be strongly dispersive and affected by coarsening. For the foam with small bubbles (at  $t = 0$  min with median radius of  $13\mu\text{m}$ ) the velocity was well predicted by Wood’s approximation. On the other hand, for larger bubbles, the velocity was very dispersive. Thus, there is a clear signature of the bubble sizes in the acoustic measurements, which is a good indication that ultrasonic spectroscopy can



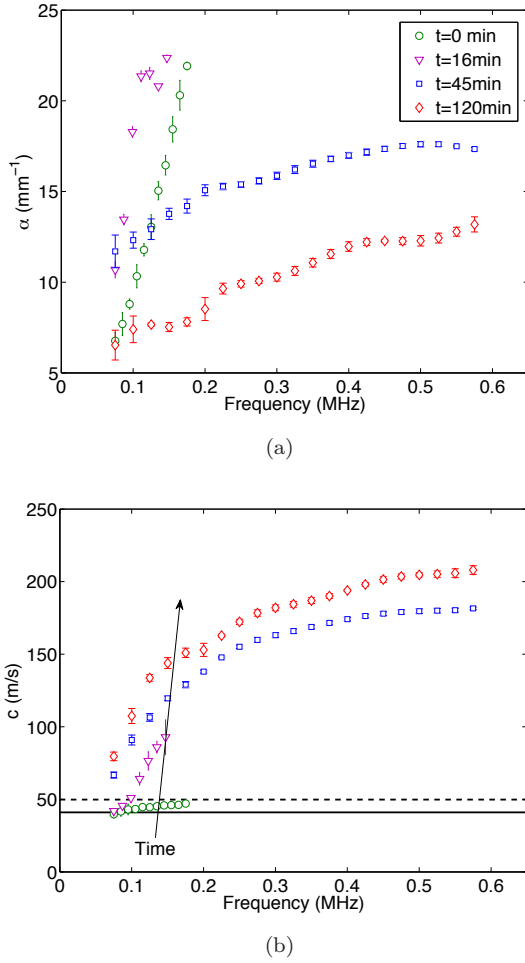


Figure 12: Attenuation and phase velocity calculated from the experimental transmission of figure 8, using the inversion method. Attenuation and phase velocity for two intermediate ages of the foam are also reported.

be envisaged in liquid foams. Note that an important feature of our experimental setup is real-time measurements (one acquisition is taken in less than 30 s). This is a major advantage for inspecting media such as liquid foams, whose time evolution is usually significant, or even crucial for some applications.

Further studies are needed for determining the exact link between the structure of the foam and its ultrasonic response. In particular, a systematic comparison of the experimental findings with the theoretical models should be undertaken. Hopefully, our setup might help for a better understanding of how ultrasound propagates in a liquid foam, an heterogeneous medium whose acoustic properties are still not clearly known.

#### Acknowledgement:

Support for the French Agence Nationale de la Recherche (project SAMOUSSE, ANR-11-BS09-001) is gratefully acknowledged. The authors thank Reine-Marie

Guillermic and Julien Bonaventure for numerous discussions, as well as the GDR “Mousses et Émulsions” for its stimulating scientific environment.

#### Appendix A. Acoustic transmission through a three-layer system

When an acoustic wave propagates through a layered media, such as the cell considered in this paper, many reflected waves are involved. For 5 media (see figure A.13) the total transmission is given by [21]

$$T_{5 \rightarrow 1} = \frac{Z_4^{\text{in}} + Z_4}{Z_4^{\text{in}} + Z_5} e^{ik_4 d_4} \times \frac{Z_3^{\text{in}} + Z_3}{Z_3^{\text{in}} + Z_4} e^{ik_3 d_3} \times \frac{Z_2^{\text{in}} + Z_2}{Z_2^{\text{in}} + Z_3} e^{ik_2 d_2} \times \frac{2Z_1}{Z_1 + Z_2}, \quad (\text{A.1})$$

where  $d_i$  is the thickness of layer  $i$ ,  $Z_i = \rho_i \omega / k_i$ ,  $k_i$  stands for the impedance and the wave vector in medium  $i$  respectively, and  $Z_i^{\text{in}}$  is the input impedance for layer  $i$ , which is given by

$$Z_1^{\text{in}} = Z_1, \quad (\text{A.2a})$$

$$Z_i^{\text{in}} = \frac{Z_{i-1}^{\text{in}} - iZ_i \tan(k_i d_i)}{Z_i - iZ_{i-1}^{\text{in}} \tan(k_i d_i)} \quad \text{for } i > 1. \quad (\text{A.2b})$$

With Eqs. (A.1) and (A.2), one can predict the transmission through the cell filled with a medium whose density is  $\rho$  and wavenumber  $k$ :  $T_{\text{cell}}(\rho, k) = T_{1 \rightarrow 5} / \exp[ik_a(d + 2h)]$ , where  $T_{1 \rightarrow 5}$  is calculated with  $k_1 = k_5 = k_a$ ,  $\rho_1 = \rho_5 = \rho_a$ ,  $k_2 = k_4 = k_p$ ,  $\rho_2 = \rho_4 = \rho_p$ ,  $d_2 = d_4 = h$ ,  $d_3 = d$  and  $k_3 = k$ ,  $\rho_3 = \rho$ .

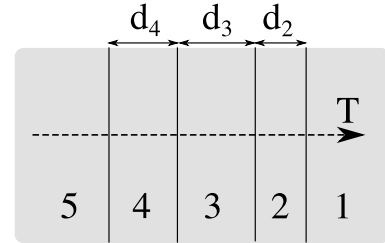


Figure A.13: The transmission through 5 successive layers is considered. Note that the layers are numbered backward compared to the direction of propagation.

Several simplifications can occur. A first interesting situation is when layer 2 is thin ( $k_2 d_2 \ll 1$ ). Then the transmission from layer 3 to layer 1 simplifies into

$$T_{3 \rightarrow 1} = \frac{2Z_1}{Z_1 + Z_3} \times \frac{1}{1 - ik_2 d_2 \left( \frac{Z_3^2 + Z_1 Z_3}{Z_2(Z_1 + Z_3)} \right)}. \quad (\text{A.3})$$

If the acoustic impedance of the wall is large compared to the ones of the media it separates ( $Z_2 \gg Z_3$  and  $Z_2 \gg Z_1$ ), another simplification occurs:

$$T_{3 \rightarrow 1} = \frac{2Z_1}{Z_1 + Z_3} \times \frac{1}{1 - ik_2 d_2 \left( \frac{Z_3}{Z_1 + Z_3} \right)}, \quad (\text{A.4})$$

which gives eq. (4) if  $Z_1 = Z_3$ .

Another interesting case is when the attenuation in medium 3 is such that multiple reflections can be neglected (note that it also works if  $d_3$  is large enough for multiple echos to be separated in the time domain), which leads to  $Z_3^{\text{in}} = Z_3$ . Thus, for a symmetrical configuration ( $1 = 5$ ,  $2 = 4$ ) with thin walls ( $k_2 d_2 \ll 1$ ) of high impedance ( $Z_2 \gg Z_3$  and  $Z_2 \gg Z_1$ ), if multiple reflection can be neglected in medium 3, eq. (A.1) reduces to

$$T_{5 \rightarrow 1} = \frac{4Z_1 Z_3}{(Z_1 + Z_3)^2} \times \frac{e^{ik_3 d_3}}{\left[1 - ik_2 d_2 \left(\frac{Z_2}{Z_1 + Z_3}\right)\right]^2}. \quad (\text{A.5})$$

- [1] A. S. Dukhin and P. J. Goetz, "Acoustics and electroacoustic spectroscopy for characterizing concentrated dispersions and emulsions", *Advan. Colloid Interface Sci.* **92** (2001)
- [2] R. E. Challis, M. J. W. Povey, M. L. Mather, and A. K. Holmes, "Ultrasound techniques for characterizing colloid dispersions", *Rep. Prog. Phys.* **68** (2005)
- [3] P. S. Bhosale and J. C. Berg, "Acoustic Spectroscopy of Colloids Dispersed in a Polymer Gel System", *Langmuir* **26** (2010)
- [4] A. H. G. Cents, D. W. F. Brilman, G. F. Versteeg, P. J. Wijnstra, and P. P. L. Regtien, "Measuring bubble, drop and particle sizes in multiphase systems with ultrasound", *AIChE Journal* **50** (2004)
- [5] A. Strybulevych, V. Leroy, M. G. Scanlon, J. H. Page, "Characterizing a model food gel containing bubbles and solid inclusions using ultrasound", *Soft Matter* **3** (2007)
- [6] I. Goldfarb, Z. Orenbakh, I. Shreiber, F. Vafina, "Sound and weak shock wave propagation in gas-liquid foams", *Shock Waves* **7** (1997)
- [7] K. B. Kann, "Sound waves in foams", *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* **263** (2005)
- [8] V. V. Zamashchikov and N. A. Kakutkina, "Experimental investigations of the acoustical properties of foams", *Sov. Phys. Acoust.* **37** (1991)
- [9] Z. M. Orenbakh and G. A. Shushkov, "Acoustical characteristics of water-air foams", *Sov. Phys. Acoust.* **39** (1993)
- [10] N. Mujica and S. Fauve, "Sound velocity and absorption in a coarsening foam", *Phys. Rev. E* **66** (2002)
- [11] I. Shreiber, G. Ben-Dor, A. Britan, and V. Feklistov, "Foam self-clarification phenomenon: An experimental investigation", *Shock Waves* **15** (2006)
- [12] D. Daugelaite, "Time dependent studies of foam stability using image analysis, electrical resistivity and ultrasound", Ph. D thesis, University of Manitoba (2011)
- [13] T. H. Gan, D. A. Hutchins, D. R. Billson, and D. W. Schindel, "The use of broadband acoustic transducers and pulse-compression techniques for air-coupled ultrasonic imaging", *Ultrasonics* **39** (2001)
- [14] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. H?ohler, O. Pitois, F. Rouyer, and A. Saint-Jalmes, "Les Mousses - Structure et Dynamique" *Collection Echelles, Belin* (2010) - in french.
- [15] M. Safouane, A. Saint-Jalmes, V. Bergeron, and D. Langevin, "Viscosity effects in foam drainage: Newtonian and non-newtonian foaming fluids", *Eur. Phys. J. E* **19**, 195–202 (2006)
- [16] R. Lemlich, "Theory for limiting conductivity of polyhedral foam at low-density", *J. Colloid Interface Sci.* **64**, 107–110 (1978)
- [17] K. Feitosa, S. Marze, A. Saint-Jalmes, D. J. Durian, "Electrical conductivity of dispersions: from dry foams to dilute suspensions", *J. Phys.: Condens. Matter* **17**, 6301 (2005)
- [18] F. Peters, L. Petit, "A broad band spectroscopy method for ultrasound wave velocity and attenuation measurement in dispersive media", *Ultrasonics* **41**, 357 (2003)
- [19] A. B. Wood, "A textbook of sound", (Bell, London, 1932)
- [20] C. Aristégui, Y. C. Angel, "Effective mass density and stiffness derived from P-wave multiple scattering", *Wave Motion* **44**, 143 (2007)

- [21] L. M. Brekhovskikh, "Waves in Layered Media" (Academic, New York, 1960)

### 4.3 Résonance acoustique dans les mousses liquides [Article 10]

En utilisant la méthode de mesure décrite dans la section précédente, nous avons pu explorer la réponse acoustique des mousses liquides entre 60 et 600 kHz, pour des rayons moyens de bulles compris entre 15 et 50  $\mu\text{m}$ . Ce sont les résultats exposés dans l'article 10, paru dans la revue *Physical Review Letters* en 2014 [77].

On va ici présenter les résultats dans un ordre différent de celui de l'article. On commence en effet par le modèle (section 4.3.1). Un aperçu des résultats expérimentaux a déjà été donné dans la section précédente, avec l'article 9. Brièvement, il s'agit d'expliquer l'existence de deux vitesses de propagation : celle de Wood à basses fréquences (et petits rayons de bulles), et une vitesse plus proche de 200 m/s à hautes fréquences (et grands rayons de bulles). Des observations similaires ont été obtenues récemment avec une technique de diffusion de lumière, dans le cadre de la thèse de Frédéric Wintzenrieth [78]. On va voir qu'un modèle-jouet permet de retrouver ces comportements. On montrera ensuite comment ce modèle nous a guidés dans l'analyse et l'interprétation des données expérimentales (section 4.3.2).

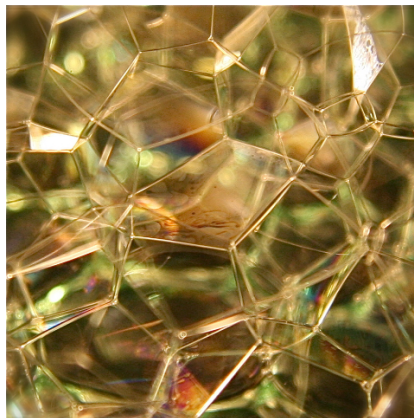


FIGURE 4.13 – La mousse photographiée ici est bien plus sèche que celles utilisées pour les expériences présentées. Mais le cliché a l'intérêt d'offrir à voir un élément primordial dans la réponse acoustique d'une mousse : les films.

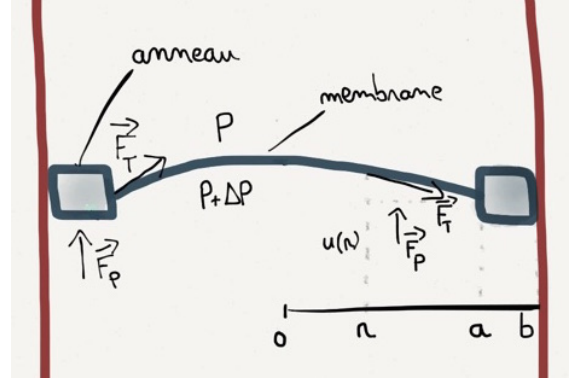
#### 4.3.1 Modèle

Le modèle contient des ingrédients très simples dont le mélange fait surgir des comportements complexes. On l'exposera en deux étapes. On étudiera d'abord un modèle-jouet à la géométrie très simple. On regardera ensuite comment ce modèle-jouet peut s'appliquer à la mousse, et comment déterminer les paramètres du modèle pour tenir compte de la structure complexe d'une mousse.

##### Modèle-jouet

Considérons (voir la figure 4.14) une membrane de rayon  $a$  tendue sur un anneau de rayon  $b$ . Le tout est placé dans un tube de rayon interne  $b$  et on suppose qu'il y a glissement sans frottement sur la paroi. Comment le système anneau+membrane se déplace-t-il lorsqu'on impose une différence de pression  $\Delta P \exp(-i\omega t)$ ? Notons  $u(r)$  l'amplitude de déplacement de la membrane à une distance  $r$  du centre, et  $U$  le déplacement de l'anneau. On note  $\mu$  la masse surfacique de la membrane et  $T$  sa tension, supposée constante. Cette tension s'oppose à toute déformation de la membrane : la force de rappel sur le disque de rayon  $r$ , donnée par la projection verticale de la force de tension, s'écrit  $2\pi r T \partial u / \partial r$ . Le bilan des forces sur une

FIGURE 4.14 – Le système considéré dans le modèle-jouet consiste en un anneau de rayons interne et externe  $a$  et  $b$ , sur lequel est tendue une membrane (le dessin est donc une vue en coupe, il faut imaginer une symétrie circulaire). Le tout peut coulisser sans frottement dans un tube de rayon  $b$ . La question est de déterminer quel est le mouvement de ce système lorsqu'il est soumis à une différence de pression harmonique  $\Delta P \exp(-i\omega t)$ .



portion de membrane comprise entre  $r$  et  $r + dr$  conduit donc à

$$-2\pi r dr \mu \omega^2 u = \Delta P 2\pi r dr + 2\pi T dr \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial u}{\partial r} \right), \quad (4.7)$$

ce qui donne, en introduisant  $q^2 = \omega^2 \mu / T$ ,

$$q^2 u + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial u}{\partial r} \right) = -\frac{\Delta P}{T}. \quad (4.8)$$

On a donc une équation différentielle de Bessel, avec un terme de forçage, dont la solution se met sous la forme :

$$u(r) = -\frac{\Delta P}{\omega^2 \mu} + A J_0(qr), \quad (4.9)$$

où  $J_0$  est la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 0 et  $A$  la constante d'intégration dont la valeur est fixée par la condition de continuité en  $r = a$ , où la membrane suit le mouvement de l'anneau :  $u(a) = U$ . Le mouvement de la membrane est donc

$$u(r) = -\frac{\Delta P}{\omega^2 \mu} + \frac{J_0(qr)}{J_0(qa)} \left[ \frac{\Delta P}{\omega^2 \mu} + U \right]. \quad (4.10)$$

Pour déterminer  $U$ , le mouvement de l'anneau, on écrit qu'il est soumis à la force de pression et à la force de traction de la membrane :

$$-M \omega^2 U = \Delta P \pi (b^2 - a^2) - 2\pi a T \left( \frac{\partial u}{\partial r} \right)_{r=a}, \quad (4.11)$$

$M$  désignant la masse de l'anneau. On aboutit à un mouvement de l'anneau et un mouvement moyen de la membrane  $\langle u \rangle$  donnés par <sup>11</sup>

$$U = -\frac{\Delta P}{\omega^2} \times \frac{\pi(b^2 - a^2) + \pi a^2 \mathcal{H}(qa)}{M + \pi a^2 \mu \mathcal{H}(qa)}, \quad (4.12a)$$

$$\langle u \rangle = -\frac{\Delta P}{\mu \omega^2} + \mathcal{H}(qa) \left[ \frac{\Delta P}{\mu \omega^2} + U \right], \quad (4.12b)$$

11. Quelques relations utiles : la dérivée de  $J_0$  vaut  $-J_1$ , l'opposée de la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1 ; et  $\int_0^a r J_0(qr) dr = (a/q) J_1(qa)$ .

avec  $\mathcal{H}(x) = 2J_1(x)/(xJ_0(x))$ . La fonction  $\mathcal{H}$  détermine le couplage entre la membrane et l'anneau. Elle n'est pas aussi compliquée qu'elle en a l'air ; on peut la voir comme une extension à 2 dimensions de la fonction  $(\tan x)/x$ . D'ailleurs, la résolution du même genre de problème à une dimension, avec une corde plutôt qu'une membrane, donnerait les mêmes équations du mouvement, avec  $(\tan x)/x$  au lieu de  $\mathcal{H}$ . Comme illustré sur la figure 4.15,  $\mathcal{H} \sim_0 1$  et  $\mathcal{H} \sim_\infty 0$ , ce qui donne 2 régimes asymptotiques très simples pour le système anneau+membrane :

$$\text{à basses fréquences } U = \langle u \rangle = -\frac{\Delta P \pi b^2}{(M + m)\omega^2} \quad (4.13a)$$

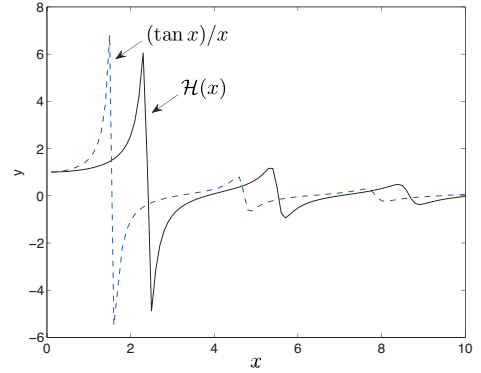
$$\text{à hautes fréquences } U = -\frac{\Delta P}{M\omega^2} \pi(b^2 - a^2), \quad (4.13b)$$

$$\text{et } \langle u \rangle = -\frac{\Delta P}{m\omega^2} \pi a^2, \quad (4.13c)$$

où  $m = \mu\pi a^2$  est la masse de la membrane. On a donc un déplacement “en bloc” à basses

FIGURE 4.15 – La fonction  $\mathcal{H}(x) = 2J_1(x)/(xJ_0(x))$  ressemble à  $\sin(x)/(x \cos(x))$ . Les deux fonctions valent 1 en 0 et tendent vers 0 à l'infini si  $x$  a une partie imaginaire non nulle (ici on a tracé pour  $\epsilon = 0.03$ ).

$$\begin{aligned} \frac{\tan x}{x} &\sim_0 1 + \frac{x^2}{3} \quad \text{et} \quad \frac{\tan(x[1 + i\epsilon])}{x[1 + i\epsilon]} \sim_{+\infty} 0 \\ \mathcal{H}(x) &\sim_0 1 + \frac{x^2}{8} \quad \text{et} \quad \mathcal{H}(x[1 + i\epsilon]) \sim_{+\infty} 0 \end{aligned}$$



fréquences, dicté par la surface totale et la masse totale du système ; tandis qu'à hautes fréquences chaque élément suit sa dynamique propre, avec sa surface et sa masse.

L'étape suivante consiste à s'intéresser au déplacement moyen du système, qui s'écrit

$$\begin{aligned} u_{\text{eff}} &= \frac{\pi(b^2 - a^2)U + \pi a^2 \langle u \rangle}{\pi b^2} \\ &= -\frac{\Delta P \pi b^2}{\omega^2 M_{\text{eff}}}, \end{aligned} \quad (4.14)$$

avec une masse effective

$$M_{\text{eff}} = \frac{M + m\mathcal{H}(qa)}{1 + (1 - \mathcal{H}(qa)) \left[ x^2 \frac{M+m}{m} - 2x \right]}, \quad (4.15)$$

où on a introduit la notation  $x = (a/b)^2$ , la fraction de surface couverte par la membrane. Cette équation reproduit les comportements asymptotiques déjà identifiés :

- À basses fréquences ( $\mathcal{H}(qa) \sim 1$ ), les deux éléments ont le même déplacement et on trouve  $M_{\text{eff}} = M + m$ .
- À hautes fréquences ( $\mathcal{H}(qa) \sim 0$ ), on trouve  $1/M_{\text{eff}} = (1 - x)^2/M + x^2/m$ , comme pour deux éléments branchés en parallèle, avec des poids relatifs qui dépendent de la fraction

surfacique occupée par la membrane. On retrouve bien les cas limites simples  $M_{\text{eff}} = m$  si  $x = 1$  (la membrane occupe toute la surface), et  $M_{\text{eff}} = M$  si  $x = 0$  (il n'y a pas de membrane et l'anneau est un disque plein).

On voit également apparaître une résonance, en utilisant le développement de la fonction  $\mathcal{H}(y) \sim_0 1 + y^2/8$ . La masse effective (4.15) se met en effet sous la forme

$$M_{\text{eff}} \sim \frac{M + m}{1 - (\omega/\omega_0)^2}, \quad (4.16)$$

$$\text{avec } \omega_0^2 = \frac{8\pi T}{x^2(M + m(1 - 2/x))}. \quad (4.17)$$

Pour que l'expression approchée (4.16) soit valide à la résonance, il faut que  $(q(\omega_0)a)^2 \ll 1$  ce qui équivaut à  $(x^2/8)[M/m + 1 - 2/x] \gg 1$ . On voit donc que pour une membrane bien plus légère que l'anneau ( $m/M \ll 1$ ) et suffisamment étendue ( $x$  ne doit pas être nul), on obtient bien une résonance basse fréquence. Il est important de remarquer que dans ces conditions, cette fréquence de résonance n'est pas liée à la première résonance du film puisqu'elle intervient avant l'asymptote verticale de  $\mathcal{H}$  que l'on peut voir sur la figure 4.15. Le meilleur indice est d'ailleurs qu'elle ne dépend pas du rayon de la membrane. C'est un oscillateur harmonique du type masse-ressort avec une raideur donnée par la tension de la membrane, et une inertie liée à la masse de l'anneau, comme le montre bien la limite simple d'une membrane de masse négligeable ( $m = 0$ ) tendue sur un anneau de surface négligeable ( $x = 1$ ) :  $\omega_0^2 = 8\pi T/M$ .

### Succession d'anneaux et de membranes

Considérons maintenant une petite tranche d'épaisseur  $e$  autour du système anneau+membrane, comme indiqué sur la figure 4.16. La continuité du déplacement impose que les petites portions de fluide en dessous et au dessus de la membrane se déplacent également de  $u_{\text{eff}}$ , ce qui donne

$$P_1 - P_2 = -u_{\text{eff}} \frac{\omega^2 V_1 \rho_0}{\pi b^2} \quad (4.18a)$$

$$P_2 - P_3 = -u_{\text{eff}} \frac{\omega^2 M_{\text{eff}}}{\pi b^2} \quad (4.18b)$$

$$P_3 - P_4 = -u_{\text{eff}} \frac{\omega^2 V_3 \rho_0}{\pi b^2}, \quad (4.18c)$$

avec  $\rho_0$  la masse volumique du fluide environnant et  $V_1, V_3$  les volumes de fluide de part et d'autre de la membrane. En sommant les équations (4.18) on obtient une équation du type  $-\nabla P = -\omega^2 u_{\text{eff}} \rho_1$ , avec une masse volumique effective de la tranche donnée par

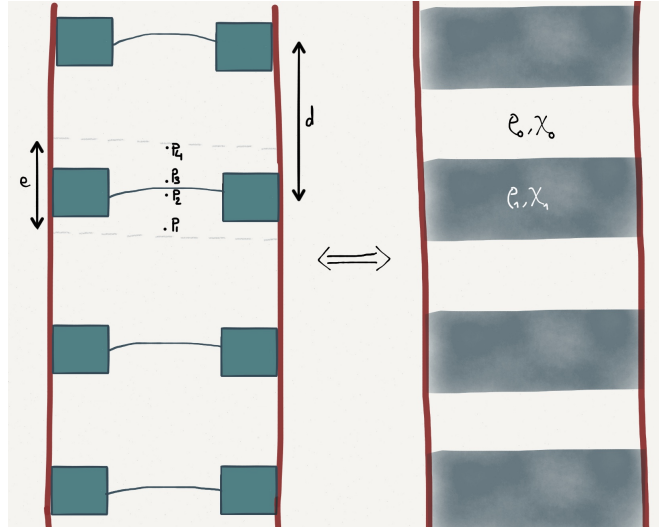
$$\rho_1 = \frac{(V_1 + V_3)\rho_0 + M_{\text{eff}}}{\pi b^2 e}. \quad (4.19)$$

On peut également calculer la compressibilité effective de cette tranche de matériau. Comme aucune dynamique particulière n'est attendue pour les changements de volume, on retrouve une loi des mélanges standard

$$\chi_1 = \frac{(V_1 + V_3)\chi_0 + V_2\chi}{\pi b^2 e}, \quad (4.20)$$



FIGURE 4.16 – On montre que le mouvement d’une tranche d’air d’épaisseur  $e$  contenant un anneau et une membrane correspond à celui d’un milieu effectif de densité et compressibilité  $\rho_1, \chi_1$  données par (4.19) et (4.20), respectivement. Une succession d’anneaux+membranes séparés d’une distance  $d$  revient donc à un système unidimensionnel semblable à celui présenté dans le chapitre 1, et se comporte aussi comme un milieu effectif à basses fréquences, avec  $\rho_{\text{eff}}, \chi_{\text{eff}}$  donnés par (4.21).



avec  $V_2$  le volume du système anneau+membrane, et  $\chi_0$  et  $\chi$  les compressibilités du fluide et du système anneau+membrane, respectivement.

Comme illustré sur la figure 4.16, une succession de membranes+anneaux séparés d’une distance  $d$  peut donc se voir comme une série de couches de matériaux de compressibilité et densité différentes. Si les épaisseurs sont faibles par rapport à la longueur d’onde, on peut décrire le tout par un milieu effectif avec

$$\chi_{\text{eff}} = (1 - \Phi)\chi_0 + \Phi\chi \quad (4.21a)$$

$$\rho_{\text{eff}} = (1 - \Phi)\rho_0 + \Phi'\rho, \quad (4.21b)$$

$\chi$  et  $\rho$  étant la compressibilité et densité du matériau de l’anneau et de la membrane (en supposant que les deux sont faits du même matériau pour simplifier) et  $\Phi$  la fraction du volume qu’ils occupent. Dans (4.21b), la fraction volumique  $\Phi'$  dépend de la fréquence suivant la loi

$$\Phi' = \frac{\Phi_a + \Phi_m \mathcal{H}(qa)}{1 + (1 - \mathcal{H}(qa)) \left[ x^2 \frac{\Phi_a + \Phi_m}{\Phi_m} - 2x \right]}, \quad (4.22)$$

où on a noté  $\Phi_m$  la fraction du volume occupée par les membranes et  $\Phi_a$  celle occupée par les anneaux ( $\Phi_a + \Phi_m = \Phi$ ). L’équation (4.22) correspond à (2) dans l’article 10.

Le système a un comportement particulièrement intéressant, et pertinent pour la comparaison avec une mousse, dans le cas d’une membrane de fraction volumique très faible ( $\Phi_m \ll \Phi_a$ ). La figure 4.17 propose par exemple de visualiser la densité effective prédite par (4.21b) et (4.22) sur un système avec  $\Phi_m = 6 \times 10^{-5}$  et  $\Phi_a = 0.08$ . A basses fréquences, le développement limité de  $\mathcal{H}$  permet de mettre  $\Phi'$  sous la forme approchée

$$\phi' = \frac{\Phi_a + \Phi_m}{1 - \left( \frac{\omega}{\omega_0} \right)^2} \quad (4.23a)$$

$$\text{avec } \omega_0^2 = \frac{8\pi nT}{x^2 \rho \Phi_a}, \quad (4.23b)$$

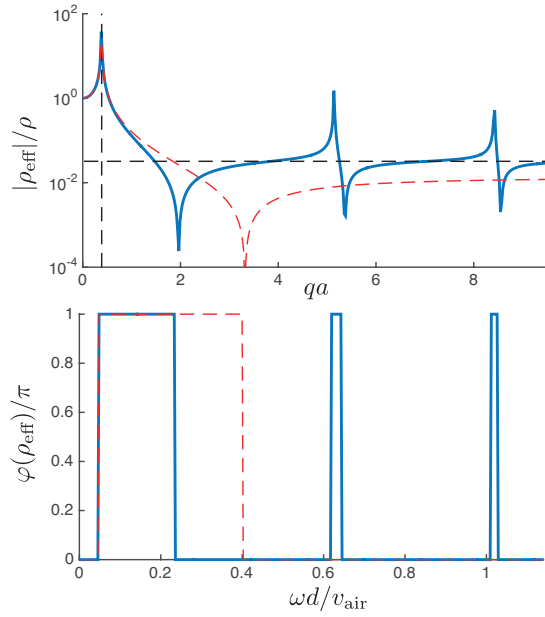


FIGURE 4.17 – Densité effective calculée par (4.21b) pour des anneaux de 1 mm d’épaisseur et 10 mm de rayon externe avec des membranes de 3  $\mu\text{m}$  d’épaisseur, 4.5 mm de rayon ( $x = 0.2$ ) et une tension  $T = 1 \text{ N/m}$ . On a pris une séparation  $d = 10 \text{ mm}$  entre chaque anneau+membrane, et  $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ ,  $\rho_0 = 1.2 \text{ kg/m}^3$ . La courbe du haut donne le module et celle du bas la phase. Pour apprécier le caractère “basses fréquences”, deux échelles sont présentes pour l’axe des abscisses : le nombre d’onde capillaire réduit (en haut) et le nombre d’onde acoustique réduit (en bas). En lignes hachurées rouges, la limite basse fréquence donnée par (4.23a).

où on a introduit la grandeur  $n$ , le nombre de membranes par unité de volume ( $n = 1/\pi b^2 d$  ici). On voit que jusqu’à  $qa = 1$ , cette expression donne une bonne approximation (la courbe hachurée rouge de la figure 4.17). Avec cette écriture sous forme d’une fonction de réponse d’un oscillateur harmonique, on retrouve le résultat classique que la phase de la réponse change après la fréquence de résonance. Ainsi, la succession d’anneaux+membranes exhibe une densité négative pour  $\omega > \omega_0$ . On peut même pousser l’analogie avec un système classique plus loin, en écrivant (4.21b) sous la forme

$$\frac{\rho_{\text{eff}}}{\rho_0} \simeq 1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \quad (4.24a)$$

$$\text{avec } \omega_p^2 = \frac{8\pi n T}{x^2 \rho_0}, \quad (4.24b)$$

où on a fait l’approximation  $1 - \Phi \simeq 1$  pour retrouver la même forme que l’équation de la permittivité diélectrique pour un modèle d’électron élastiquement lié. La pulsation  $\omega_p$  correspond alors à la fréquence plasma. L’analogie avec le plasma se retrouve d’ailleurs pour le cas d’anneaux immobiles. On a alors  $\omega_0 = 0$  et le milieu exhibe une densité négative pour  $\omega < \omega_p$ , tout comme un plasma possède une permittivité négative à basses fréquences. Une succession de membranes fixées sur les parois d’un tube est donc l’analogie acoustique de la forêt de fils conducteurs pour les micro-ondes [79]. Une équipe coréenne a d’ailleurs fait ce genre d’expérience pour obtenir un méta-matériau acoustique de densité négative [80, 81]. On peut comprendre cette négativité par le fait que les membranes répondent élastiquement à la différence de pression, ce qui donne le signe opposé à ce qu’une réponse inertielle normale doit donner.

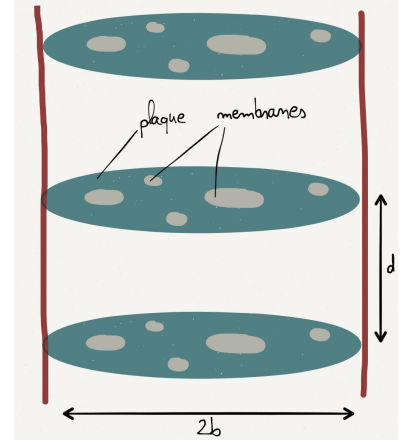
Ceci étant, l’approximation  $qa \ll 1$  ne tient pas jusqu’au régime plasma, et on constate des déviations importantes entre les courbes bleues et rouges sur la figure 4.17. Avec l’expression complète, on prévoit l’existence d’une série de résonances des membranes, pour les zéros de

la fonction de Bessel  $J_0$ .<sup>12</sup> Ces résonances interviennent autour d'une valeur moyenne définie par  $1/\Phi' = x^2/\Phi_m + (1-x)^2/\Phi_a$ , marquée par la ligne horizontale hachurée sur la figure 4.17 du haut.

### Passage à la mousse

Comme annoncé, le modèle jouet permet de retrouver certaines des observations expérimentales avec les mousses liquides : on a bien la loi des mélanges à basses fréquences, et la densité effective à hautes fréquences correspond à celle d'un air alourdi par les films, compatible avec une vitesse effective du son légèrement inférieure à la vitesse dans l'air. On a donc regroupé en un seul modèle les lois de Wood et de Kann. Reste à se convaincre qu'une mousse liquide se comporte effectivement comme une série de membranes tendues sur des anneaux...

FIGURE 4.18 – Pour tenir compte de la polydispersité, on remplace les anneaux par des plaques percées de trous recouvertes de membranes, supposées toutes de la même épaisseur et avec la même tension.



Il faut notamment aborder la question de la polydispersité. Une mousse ne comporte en général pas qu'une seule taille de bulle. On peut assez facilement étendre le modèle jouet à un cas polydisperse : comme illustré sur la figure 4.18, au lieu de considérer un simple anneau, on s'intéresse à une plaque rigide percée de trous sur lesquels sont tendues des membranes. Chaque membrane a alors le même genre de déplacement que précédemment, selon l'équation (4.9), mais la constante d'intégration dépend a priori du rayon de la membrane :  $A \rightarrow A(a)$ . Et, la plaque subissant une force de traction de la part de l'ensemble des membranes, on a

$$-M\omega^2 U = \Delta P(1-x)\pi b^2 + 2\pi T \int n(a)da(\pi b^2 d)A(a)qaJ_1(qa), \quad (4.25)$$

avec  $n(a)da$  le nombre de membranes par unité de volume ayant un rayon compris entre  $a$  et  $a + da$ . Le calcul complet aboutit alors à un résultat de la même forme que précédemment, sauf que tous les termes en  $\mathcal{H}(qa)$  doivent être remplacés par leur valeur moyenne :  $(d/x) \int n(a)da\pi a^2 \mathcal{H}(qa)$ . La figure 4.19 présente la densité effective obtenue pour une distribution lognormale de membranes. Sans surprise, on constate que la polydispersité étale le

12. À noter que la première résonance de la membrane, attendue pour  $qa \simeq 2.4$  (voir la figure 4.15), fait exception : il ne s'y passe rien de particulier.

spectre des résonances de membranes : au lieu d'accidents à des fréquences bien marquées comme dans le cas monodisperse (figure 4.17), on a tout une série de petites fluctuations. Ces fluctuations sont lissées si on tient compte de la dissipation des ondes capillaire sur les membranes. On attend donc qu'une seule résonance dans le cas polydisperse, celle de basse fréquence.

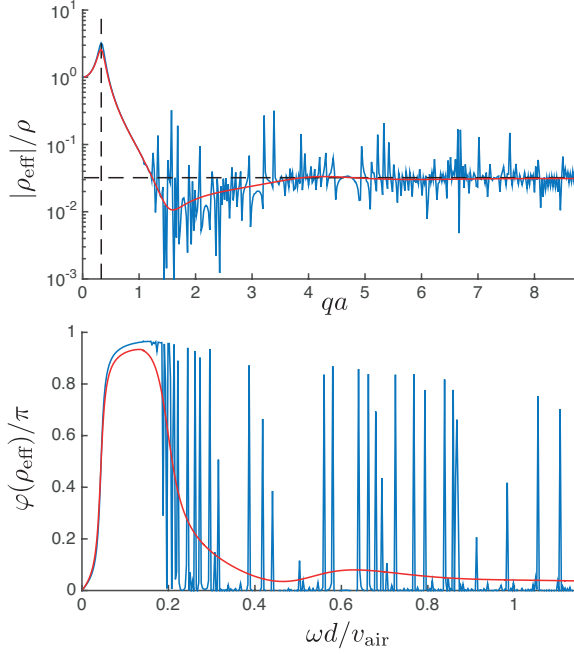


FIGURE 4.19 – Densité effective pour une distribution lognormale de rayon de membranes  $n(a) = n_f \exp[-(\ln(a/a_0))^2 / 2\epsilon_f^2] / (a\epsilon_f \sqrt{2\pi})$ , avec  $n_f = 1/(\pi b^2 d)$ ,  $a_0 = 4.1$  mm et  $\epsilon_f = 0.2$ , les autres paramètres étant comme pour la figure 4.17. En bleu, la courbe sans dissipation. En rouge, en tenant compte du frottement de la membrane sur l'air :  $q = \omega \sqrt{\rho e / T} [1 + i(\rho_0 \ell_v) / (\rho e)]$  avec  $\ell_v = \sqrt{\eta_0 / (2\rho_0 \omega)}$ , la longueur visqueuse dans l'air [82].

Une étape importante pour passer du modèle-jouet à la mousse est de déterminer  $d$ , la distance entre deux plaques. Dans une véritable mousse, les films ne sont pas arrangés selon des plans parallèles distants d'une distance  $d$  fixe. Comme illustré sur la figure 4.20, la question est de savoir comment couper la mousse en tranches de la bonne épaisseur, de sorte que chaque tranche ne contienne qu'une seule série de films dans son épaisseur. Le bon choix correspond en fait à la valeur de  $d$  qui donne la bonne fraction surfacique de film :  $d \int n(a) da \pi a^2 = x$ . On obtient finalement que la fraction volumique effective  $\Phi'$  est donnée par une formule très similaire à (4.22) :

$$\Phi' = \frac{\Phi_a + \Phi_m \frac{\int \mathcal{H}(qa) a^2 n(a) da}{\int a^2 n(a) da}}{1 + \left[ 1 - \frac{\int \mathcal{H}(qa) a^2 n(a) da}{\int a^2 n(a) da} \right] \left[ x^2 \frac{\Phi_a + \Phi_m}{\Phi_m} - 2x \right]}. \quad (4.26)$$

À basses fréquences, cette équation fait toujours apparaître un régime résonant. On obtient des formules particulièrement simples dans le cas d'une distribution lognormale (voir légende de la figure 4.19), en notant que  $\int n(a) a^p da = n_f a_0^p \exp(p^2 \epsilon_f^2 / 2)$ . La fréquence de résonance s'écrit alors

$$\omega_0^2 = \frac{8\pi n_f T}{x^2 \rho \Phi_a} \exp[-4\epsilon_f^2]. \quad (4.27)$$

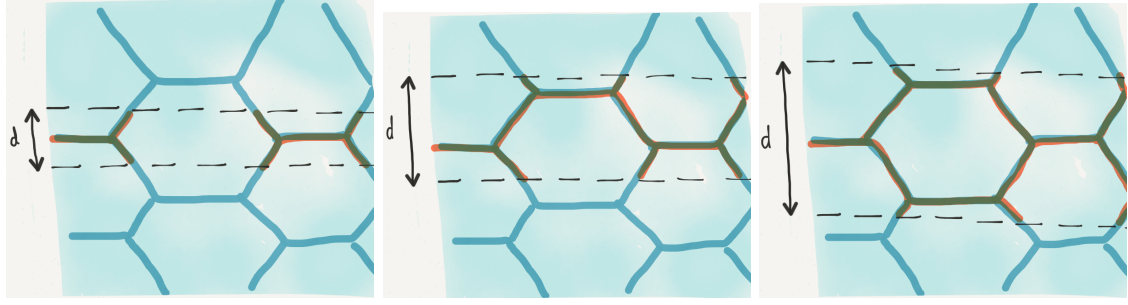


FIGURE 4.20 – Comment choisir  $d$ ? Le modèle-jouet suppose une répartition des membranes en couches bien définies. Pour une vraie mousse, il faut trouver l'épaisseur  $d$  d'une couche telle qu'il n'y ait ni trou (comme à gauche) ni deux films en série (comme à droite).

On a donc une formule très proche de (4.23b), sauf que la polydispersité a pour effet d'abaisser la fréquence de résonance.

Au total, le modèle ne réclame pas moins de 10 paramètres : 3 pour la distribution en taille des membranes ( $n_f$ ,  $a_0$ ,  $\epsilon_f$ ), 5 pour la relation de dispersion des ondes capillaires ( $T$ ,  $e$ ,  $\rho$ ,  $\eta_0$ , et  $\rho_0$ ), ainsi que 2 pour la structure de la mousse ( $x$  et  $\Phi_a$ <sup>13</sup>). Passons en revue les paramètres les plus importants, en essayant de les relier à des paramètres connus pour une mousse :

- $\Phi_a$ , la fraction volumique de la plaque correspond à la fraction volumique de liquide dans l'ensemble du réseau de bords de Plateau. Dans la mesure où les films contiennent très peu d'eau, on peut faire l'approximation  $\Phi_a = \Phi$ , la fraction volumique de liquide.
- $T$  est donné par la tension de surface des films, avec un facteur 2 pour tenir compte de la double interface :  $T = 2\sigma$ .
- $x$  correspond à la fraction de surface occupée par les films. Comme illustré sur la figure 4.21, cela dépend directement de la fraction volumique de liquide. Pour une mousse très humide, à la limite du liquide bulleux, on attend  $x = 0$  puisqu'il n'y a pas de film. Et pour une mousse très sèche, on attend un  $x$  qui tend vers 1. Par chance, Princen [83] a donné une loi empirique pour la fraction surfacique de films dans une mousse :  $x = 1 - 3.20[7.70 + (1 - \Phi)/\Phi]^{-1/2}$ .
- $n_f$  correspond au nombre de films par unité de volume. Dans le modèle-jouet, la structure 1D du système contraint la direction de propagation. Dans le cas de la mousse, toutes les directions de propagation sont a priori possibles. Pour généraliser, il faut donc ne considérer que les films perpendiculaires à la direction de propagation. Comme on connaît généralement mieux le contenu en bulles d'une mousse, on évalue  $n_f$  en passant pas les bulles. Notant  $N$  le nombre de films par bulle ayant la bonne orientation, on obtient  $n_f = Nn$ ,  $n$  étant le nombre de bulles par unité de volume.  $N = 1$  paraît un ordre de grandeur raisonnable. Et puisque la fraction volumique de gaz est  $1 - \Phi$ , on a  $n = 3(1 - \Phi)/(4\pi R^3)$ ,  $R$  étant le rayon des bulles. La formule se généralise à  $n = 3(1 - \Phi)/(4\pi R^3 \exp[9\epsilon^2/2])$  pour une distribution lognormal de rayon de bulles, avec un rayon médian  $R$  et une polydispersité  $\epsilon$ .

13. Notons que  $\Phi_m = \int \pi a^2 e n(a) da$  est déterminé si on connaît les autres paramètres.

- $a_0$  est le rayon médian des films dans la mousse. On peut l'évaluer grossièrement en estimant qu'une bulle de surface  $4\pi R^2$  comporte 6 films pour une surface  $6\pi a_0^2$  (une bulle cubique). Le rayon des films est donc lié à  $R$  par la fraction surfacique de film  $x$  :  $a_0 = R\sqrt{2x/3}$ .
- $\epsilon_f$ , la polydispersité des films, est difficile à estimer. Elle est certainement liée à la polydispersité des bulles, mais sans formule simple. Faute de mieux, on estime que  $\epsilon_f = \epsilon$ .
- $e$  correspond à l'épaisseur des films, supposée identique d'un film à l'autre. Pour une mousse polydisperse, on peut tout à fait envisager des épaisseurs différentes d'un film à l'autre, voire une relation entre l'épaisseur et le rayon d'un film. Mais pour faire simple, on ne va considérer qu'une seule épaisseur, que l'on peut voir comme une épaisseur moyenne de film dans la mousse.

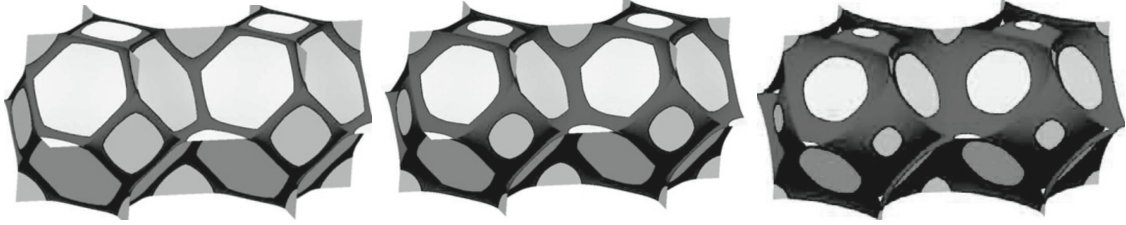


FIGURE 4.21 – La cellule de Kelvin (un octaèdre tronqué) est une bonne cellule élémentaire pour apprécier la structure d'une mousse. Ici, cela permet de voir comment la surface des films diminue à mesure qu'une mousse devient plus humide ( $\Phi = 1, 3$ , et  $9\%$  de gauche à droite). Les images ont été obtenues par *Surface Evolver* et proviennent de la figure 2.21b de [46].

On est donc capable de passer du modèle-jouet à la mousse, et de calculer  $\Phi'$ . Une quantité particulièrement intéressante, parce qu'elle va dicter le comportement dispersif de la mousse, est la fréquence de résonance. Avec les paramètres évalués ci-dessus pour la mousse, on obtient

$$\omega_0^2 = \frac{12N\sigma(1 - \Phi)}{x^2\rho\Phi R^3 \exp[9\epsilon^2/2 + 4\epsilon_f^2]}. \quad (4.28)$$

Remarquons, une fois de plus, que cette fréquence de résonance ne dépend ni du rayon, ni de l'épaisseur des films. Quant au rayon des bulles,  $R$ , il n'apparaît que comme un intermédiaire pour évaluer  $n_f$ , le nombre de films par unité de volume. Plus les bulles sont petites, plus le nombre de films par unité de volume sera grand, augmentant ainsi la raideur du système, et donc la fréquence de résonance.

#### 4.3.2 Données expérimentales

Les mesures de vitesse et d'atténuation du son dans la mousse ont révélé une propagation très dispersive, et fortement dépendante de la taille des bulles, comme illustré par la [figure 12](#) de l'article 9, ou encore par la [figure 1](#) de l'article 10. On parvenait à remettre tous les points de mesures sur une courbe maîtresse en adimensionnant la fréquence par la fréquence de



Minnaert, comme montré sur la figure 4.22. Comme cela avait déjà été constaté dans d'autres expériences (voir la question 4 de la page 104), la fréquence de Minnaert des milieux bulleux semblait donc jouer un rôle dans la dynamique de la mousse ! Cette coïncidence nous a conduit à explorer longtemps l'idée d'une mousse liquide qui se comporterait comme un milieu bulleux concentré, avec une fréquence de Minnaert inchangée malgré le manque de liquide. Ce n'est qu'en développant le modèle tenant compte du rôle des films,<sup>14</sup> exposé ci-dessus, qu'on a compris que la confusion venait d'une coïncidence : les deux fréquences de résonance sont du même ordre de grandeur parce que, dans notre système,  $\sigma/(x^2\Phi R)$  est de l'ordre de  $P_0$ , la pression atmosphérique.

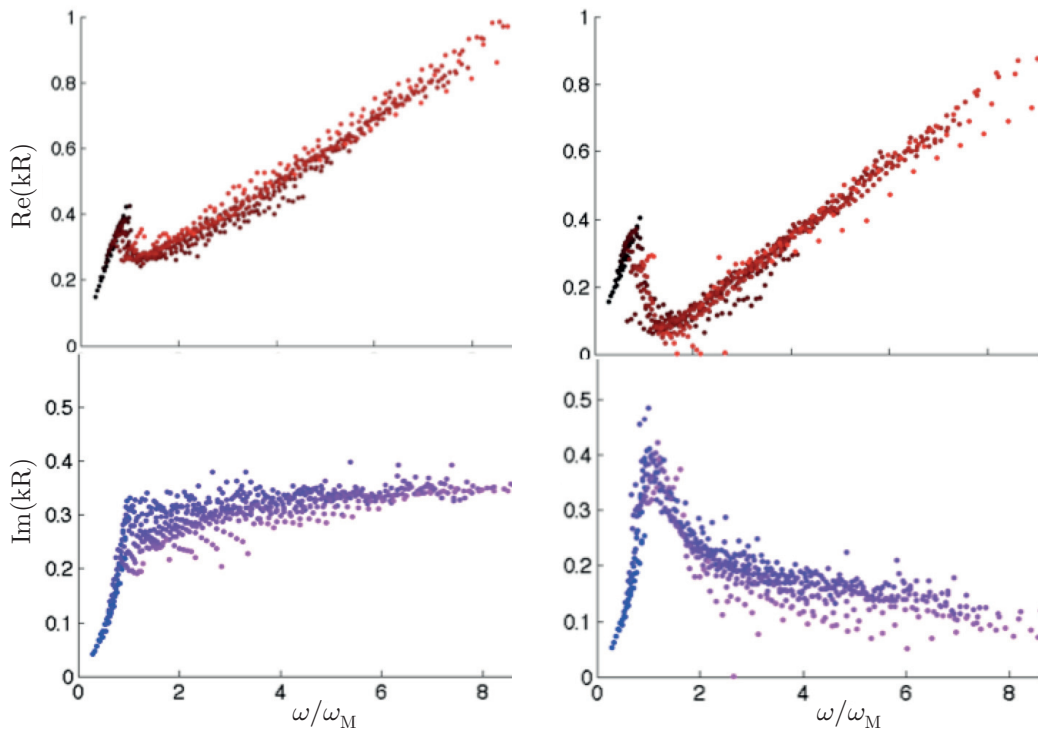


FIGURE 4.22 – Les mesures à différents rayons moyens  $R$  se mettent sur des courbes maîtresses en traçant  $kR$  en fonction de  $\omega/\omega_M$ . Sur chaque courbe, la couleur des points s'éclaircit à mesure que le rayon moyen des bulles augmente (du noir au rouge clair pour la partie réelle, en haut ; du noir au violet pour la partie imaginaire, en bas). Les courbes de gauche correspondent à l'analyse des données en supposant la densité donnée par la loi de mélange, celles de droite en prenant la loi de mélange pour la compressibilité. Les données correspondent ici à une mousse de fraction volumique de liquide de 6%, avec des rayons moyens de bulles passant de 13 à 57  $\mu\text{m}$ .

Le modèle a aussi eu des implications sur le traitement et l'analyse des données. On a vu par exemple, dans l'article 9, que notre premier traitement des données de transmission consistait à considérer que la densité effective du milieu était donnée par la loi des mélanges, et que la compressibilité était dispersive. On était bien entendu guidé par le cas des milieux

14. Il faut noter que, s'il n'a pas pu participer à l'élaboration détaillée du modèle, c'est bien Cyprien Gay qui a le premier suggéré l'idée de regarder la dynamique d'un film tendu sur un bord de Plateau.

bulleux, pour lequel cette vision est la bonne. Mais le modèle de membrane suggère que c'est le contraire :  $\chi$  suit la loi des mélanges, tandis que  $\rho$  est dispersif. La figure 4.22 montre comment ce changement d'analyse affecte la relation de dispersion que l'on obtient. Si les deux branches asymptotiques de la partie réelle du nombre d'onde ne sont que peu affectées, le résultat est très différent autour de la résonance, ainsi que pour la partie imaginaire du nombre d'onde.

Le nouveau modèle suggère également que la fréquence de résonance n'est pas en  $R^{-1}$  (comme pour Minnaert), mais en  $R^{-1.5}$ . Pour des changements de rayon limités à un facteur 3 ou 4, il est difficile de trancher entre deux lois de puissance si proches. Mais l'insert de la figure 3 de l'article 10 suggère qu'une meilleure courbe maîtresse est effectivement obtenue pour la loi en  $R^{-1.5}$ .

Pour parvenir à un accord quantitatif avec les données expérimentales, il faut ajouter un 11<sup>ème</sup> paramètre au modèle. En effet, le modèle ne comporte pas assez de dissipation. Cela se manifeste par un pic de résonance beaucoup trop marqué. On voit d'ailleurs que dans les développements à basses fréquences du modèle, comme dans l'équation (4.23a), on obtient la réponse d'un oscillateur harmonique sans amortissement. La partie imaginaire de  $q$  suffit à lisser les résonances de membrane, mais elle est bien trop faible pour affecter la résonance principale. Après quelques recherches infructueuses d'un mécanisme de dissipation satisfaisant, nous avons opté pour une approche empirique : on a introduit un terme visqueux dans le couplage entre le bord de Plateau et le film. Cela se manifeste par l'introduction d'un terme en  $T(1 - i\omega\tau)$  au lieu de  $T$  dans (4.10), avec un temps caractéristique  $\tau$  à déterminer. En prenant  $\tau = 10 \mu\text{s}$ , on a obtenu un accord convenable avec les expériences, comme indiqué sur la figure 5 de l'article 10. À noter qu'il y a un autre paramètre d'ajustement : on ne connaît pas l'épaisseur des films dans la mousse. On a trouvé  $e = 70 \text{ nm}$ , qui paraît un ordre de grandeur raisonnable, bien qu'un peu élevé comparé aux mesures d'épaisseur sur des films uniques [46].

Un des succès du modèle est sa capacité à expliquer la variation de la fréquence du pic d'atténuation en fonction de la fraction volumique de liquide (voir la figure 2). On trouve une dépendance non-monotone. La fréquence de résonance tend vers l'infini pour une mousse de plus en plus sèche ( $\Phi \rightarrow 0$ ), parce qu'il y a de moins en moins d'inertie. Et elle tend également vers l'infini quand on s'approche de la limite d'empilement compact. Cela se voit sur la dépendance en  $1/x$  de  $\omega_0$  (voir (4.23b) par exemple). L'interprétation physique n'est pas aussi claire dans ce cas. Mais on peut avancer que, si la surface de film se réduit, le gradient de pression va surtout entraîner les bords de Plateau, et les films vont peu jouer. On s'attend donc bien à ce que la formule de Wood redevienne valide lorsque la mousse s'approche du milieu bulleux ; ce qui est bien le cas si  $\omega_0 \rightarrow +\infty$ .

## Resonant Acoustic Propagation and Negative Density in Liquid Foams

Juliette Pierre,<sup>1</sup> Benjamin Dollet,<sup>2</sup> and Valentin Leroy<sup>1</sup><sup>1</sup>*Laboratoire Matière et Systèmes Complexes, Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), Paris, France*<sup>2</sup>*Institut de Physique de Rennes, Université Rennes 1, CNRS (UMR 6251), Rennes, France*

(Dated: January 2, 2014)

We measured the dispersion relation for acoustic longitudinal waves in liquid foams, over a broad frequency range (60–600 kHz). Strong dispersion was found, with two non-dispersive behaviors, separated by a negative density regime. A new model, based on the coupled displacements of films, liquid channels and gas in the foam, rationalizes all the experimental findings.

Liquid foams, dispersions of gas bubbles in a liquid matrix stabilized by surfactants [1], are present in a wide range of industrial applications, from food and personal care to ore flotation and enhanced oil recovery [2]. They are opaque materials, hence difficult to characterize in depth, and new ways of probing them are highly desirable. Acoustic probes are good candidates, since they are unexpensive and nonintrusive, and widely used as such in nondestructive testing [3]. However, surprisingly little is known about liquid foam acoustics, contrary to other multiphase media such as porous media [4], colloidal suspensions, or emulsions [5, 6]. Most of the few existing experimental studies reported speeds of sound of order 50 m/s [7–9], close to the so-called Wood model [10]. The latter treats foams as an effective medium, which density and compressibility are given by the mixture law, *i.e.* averages of those of the gas and liquid phases, weighted by their respective volume fractions. However, much higher speeds of sound, of order 200 m/s, were also measured [11, 12], and some studies reported a resonant behavior [13, 14], reminiscent of the low frequency resonance of a single bubble in an unbounded liquid, the so-called Minnaert resonance [15], which is the key ingredient of acoustic propagation through dilute bubbly liquids [16, 17]. In this Letter, we use a novel setup [18] to measure speed of sound and attenuation through liquid foams over a large range of frequencies  $f$  (60–600 kHz) and bubble radii (15–50  $\mu\text{m}$ ). Our results are explained by a new model, which fully reconciles all aforementioned different viewpoints on liquid foam acoustics. In particular, we show that liquid foams are natural acoustic metamaterials, exhibiting a negative effective density over a large range of frequencies and bubble sizes.

The general principle of our technique is to measure the complex transmission of short ultrasonic pulses through a foam sample of known thickness. From this complex transmission, we can determine the effective complex wavevector as a function of frequency:  $k = \omega/v + i\alpha$ , with  $\omega = 2\pi f$ , and  $v$  and  $\alpha$  the phase velocity and attenuation of sound. In an ageing foam, the bubble median radius  $R$  increases over time by gas diffusion between bubbles [1]. Hence, making measurements at different times, we obtain  $k(\omega, R)$ , the complex wavevector as a function of frequency and median radius. Some aspects

of the ultrasonic technique and the foam production and characterization are briefly described below; more details can be found in [18] for the former, and [19] for the latter.

Transmission measurements were performed with two broadband air transducers. The thickness of the foam samples was set to 0.5 mm by sandwiching them between two plastic films, which were as thin as possible to allow a good transmission of ultrasound. An inversion procedure was used to deduce the effective wavevector  $k$  of sound in the foam from the complex transmission measured through the three-layer system {film-foam-film}. This procedure relied on the assumption that either the effective density  $\rho_{\text{eff}}$  or the effective compressibility  $\chi_{\text{eff}}$  were known. Guided by the model presented below, we assumed that the effective compressibility of the liquid foam was given by the usual mixture law:  $\chi_{\text{eff}} = \Phi\chi_{\ell} + (1 - \Phi)\chi_g$ , where  $\Phi$  is the liquid volume fraction and  $\chi_{\ell,g}$  the compressibility of the liquid and gaseous phase.

Liquid foams with liquid volume fractions ranging from 3% to 22% were obtained by the two-syringe method [19]. As in [19], the foaming liquid was an aqueous solution containing 10 g/L of sodium dodecyl sulfate to ensure good foamability, and 0.5 g/L of xanthane to reduce drainage. Given the small thickness of the samples (0.5 mm), the typical radius of the bubbles (less than 50  $\mu\text{m}$ ) and the presence of xanthane, we were able to neglect the gradient of liquid fraction due to gravity [20]. The gaseous phase was air saturated with vapor of  $\text{C}_6\text{F}_{14}$ , an insoluble gas that slows down ageing. Thus, the typical time over which the foam was changing ( $\sim 10$  minutes) was long enough not only to consider the acoustic measurements as instantaneous, but also to perform bubble size measurements [19]. To do that, we took a small sub-sample of the foam from the syringe, and pour it on a liquid bath to obtain a bubble raft, a two-dimensional structure easy to image. Assuming that the left-over in the syringe was ageing the same way as the foam between the films, we were able to follow the time evolution of the bubble size distribution. We found lognormal distributions  $\exp\{-[\ln(r/R)]^2/2\epsilon^2\}/(r\epsilon\sqrt{2\pi})$  with a median radius  $R$  going from 15 to 50  $\mu\text{m}$  in 90 minutes, and a polydispersity of  $\epsilon \simeq 0.4$  without significant time evolution (Fig. 1c).

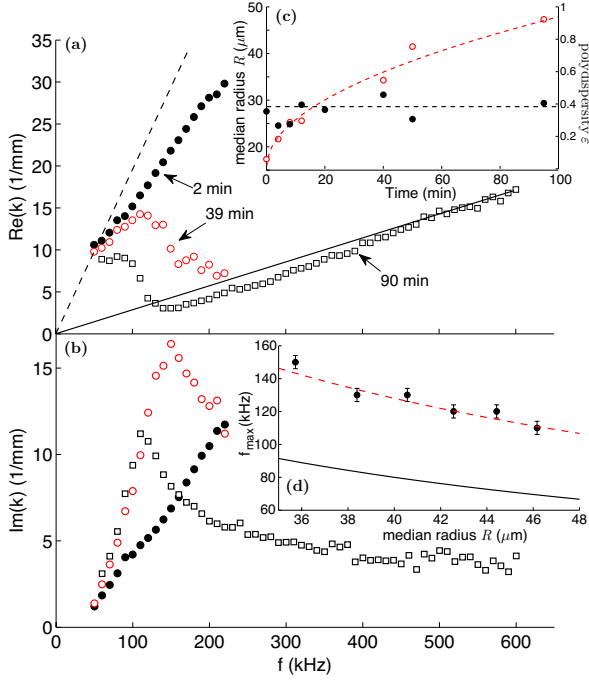


FIG. 1: (a) Real part of the wavenumber as a function of the frequency, measured at three different ageing times in a liquid foam with  $\Phi = 11\%$ . Lines show dispersion curves for constant velocities of 32 m/s (dash) and 220 m/s (solid). (b) Imaginary part of the wavenumber. (c) Median radius of the bubbles ( $\circ$ ) and polydispersity ( $\bullet$ ) as functions of the ageing time. (d) Frequency of the maximum of attenuation as a function of the median radius; solid line is the Minnaert frequency  $f_M$ , dashed line is  $1.6f_M$ .

Measurements shown in Fig. 1a clearly indicate that the propagation of acoustic waves in a liquid foam is dispersive. The phase velocity at low frequencies is close to the value predicted by Wood law:  $v = [(\Phi\rho_\ell + (1 - \Phi)\rho_g)(\Phi\chi_\ell + (1 - \Phi)\chi_g)]^{-1/2} = 32$  m/s for  $\Phi = 11\%$ . But it significantly deviates from this value as the frequency increases and the foam ages. At  $t = 90$  min the phase velocity is of the order of 220 m/s.

The attenuation (Fig. 1b) is also frequency-dependent and evolves as the foam ages. For the longest times (i.e. largest bubbles), a peak is clearly visible. One can report the frequency of the maximum of attenuation  $f_{\max}$  as a function of  $R$  (Fig. 1d), and compare it with the Minnaert frequency  $f_M = \sqrt{3\gamma P_0/\rho}/(2\pi R)$  [15], where  $P_0$  is the pressure of the gas in the bubbles, and  $\gamma$  the ratio of the specific heat capacities. Taking  $f_{\max} = 1.6f_M$  gives a reasonable law (dashed line in Fig. 1d), suggesting an effective Minnaert resonance, as proposed in previous experiments [13, 14]. However, the Minnaert frequency is calculated for a single bubble in an infinite volume of liquid of density  $\rho$ , and for highly concentrated media such as foams, it seems unrealistic. Replacing  $\rho$  by the actual density of the surrounding medium  $\Phi\rho$  would lead

to  $3f_M$  for  $\Phi = 11\%$ , larger than the 1.6 factor we measured. Moreover, it predicts a resonance frequency that decreases with  $\Phi$ , contrary to our experiments (Fig. 2). Finally, the range of radii over which we measured a maximum of attenuation (Fig. 1d) is too small to validate a scaling law in  $f_{\max} \sim 1/R$ . Instead of limiting our analysis to the peak of attenuation, we can take advantage of all the radii by collapsing the data on a master curve: we plot  $kR^p$  as a function of  $fR^p$ , with an exponent  $p$ . As shown in Fig 3, a good collapse is obtained for  $p = 1.5$ , as suggested by the model we present below. This indi-

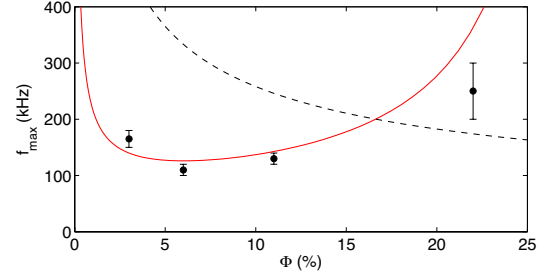


FIG. 2: Frequency of the maximum of attenuation as a function of the liquid fraction, for median radii of  $40\mu\text{m}$ . Dashed line is the Minnaert resonance frequency with an effective density:  $f_M/\sqrt{\Phi}$ . Solid line is the prediction of our model.

cates that  $R$  is the key parameter that governs the frequency dependence of the acoustic behavior of the foam (the polydispersity being almost constant with time).

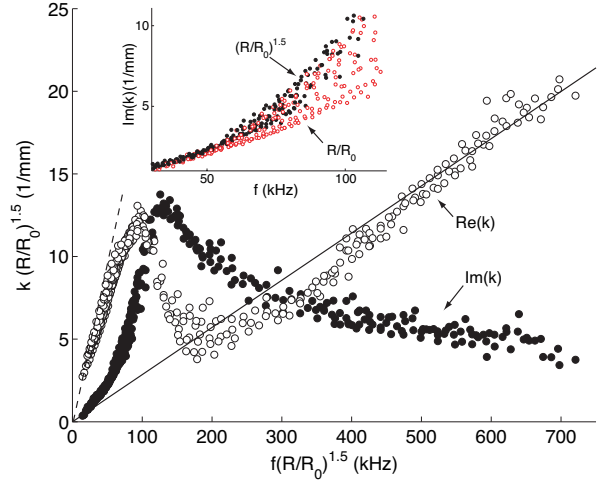


FIG. 3: Rescaled dispersion relation for a reference median radius of  $R_0 = 40\mu\text{m}$ . Lines are for constant velocities of 32 (dash) and 220 m/s (solid). Inset: the  $R^{-1.5}$  scaling (solid symbols) is better than the  $R^{-1}$  one (open symbols).

Contrary to usual bubbly media, bubbles in a foam are in contact through thin films, separated by liquid channels (also called Plateau borders) and vertices [1]. Usually films contain a very small amount of water,

hence films and liquid channels have very different inertia, whose influence we shall now model. In first approximation, we neglect polydispersity, and we idealize the foam as a one-dimensional array of spatial periodicity  $d$  of the following unit cell (Fig. 4a): a flexible, circular membrane of thickness  $e$  and radius  $a$  (representing the soap film), attached to a rigid ring of external radius  $b$  and mass  $m_c$  (representing the liquid channel), and surrounded by air of density  $\rho_a$ . Experiments show that the wavelength  $\lambda = 2\pi/\text{Re}(k)$  remains larger than  $7R$ , even at the highest frequency investigated (Fig. 3). Hence, the model is based on the hypothesis  $\lambda \gg d$ .

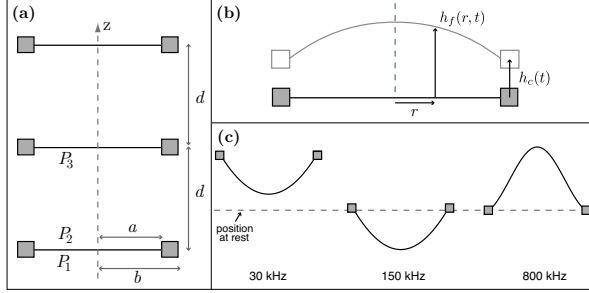


FIG. 4: (a) Sketch of the idealized foam structure: a periodic array of flexible films and rigid rings (representing the liquid channels), separated by a distance  $d$ . (b) Zoom on one unit cell: the flexible film is attached to a rigid ring sketched as a square. (c) Profiles of a  $20\mu\text{m}$  radius film at three different frequencies, as predicted by the model for a  $\Delta P = 1\text{ Pa}$  excitation. Note that the deformations are not as high as suggested by the picture: the maximum of displacement of the film at  $800\text{ kHz}$  for instance is about  $1.5\text{ nm}$ , *i.e.* more than four orders of magnitude smaller than the diameter of the film.

To predict the acoustic wavevector, we need to model the behavior of the unit cell under compression (effective compressibility  $\chi_{\text{eff}}$ ), as well as its motion driven by the average pressure gradient  $(P_3 - P_1)/d$  (effective density  $\rho_{\text{eff}}$ ):  $k^2 = \omega^2 \rho_{\text{eff}} \chi_{\text{eff}}$ . Our model geometry resembles that of Lee *et al.* [21], who studied sound propagation through an array of elastic membranes. In particular, in the limit  $\lambda \gg d$ , the effective compressibility is the same: an almost uniform pressure change is applied to the unit cell, hence its total volume changes as the sum of the liquid volume change and the gas volume change, which yields the usual mixture law for the effective compressibility.

The effective density, on the other hand, is more complicated because the *flexible* film and the *rigid* ring do not react the same way when submitted to a given pressure gradient. A portion of the film between  $r$  and  $r+dr$  is driven by the pressure force  $2\pi r dr (P_1 - P_2)$  (see Fig. 4a) and by the vertical projection of the tension force  $4\pi\sigma[(r\partial h_f/\partial r)_{r+dr} - (r\partial h_f/\partial r)_r]$ . In harmonic regime,  $h_f(r, t) = \text{Re}[z_f(r)e^{-i\omega t}]$ , the profile of the film is thus given by  $z_f(r) = AJ_0(qr) + \Delta P/(\rho\omega^2)$ , where  $A$  is its

amplitude of vibration,  $\Delta P = P_2 - P_1$  the driving pressure,  $q = \omega\sqrt{\rho e/2\sigma}$  the wavenumber of capillary waves on the film [27], and  $J_0$  the Bessel function of order 0 of the first kind [22]. The unknown constant  $A$  is determined by matching the motion of the film edge with that of the ring:  $h_f(r = a, t) = h_c(t)$ . It is interesting to note that even though the pressure field is uniform in the lateral direction, it produces oscillations of the film. This is due to the film being attached to the ring, which has a different inertia. The ring is driven by the pressure difference  $\Delta P$  and by the traction of the film  $-4\pi\sigma a(1 - i\omega\tau)(\partial z_f/\partial r)_{r=a}$ , in which we include a phenomenological damping time  $\tau$  to account for a friction force (see SM1 for a full discussion on dissipation). We finally get the full profile

$$z_f(r) = \frac{\Delta P}{\rho e \omega^2} \left[ 1 - \frac{m_c - m_f(b^2 - a^2)/a^2}{m_c + m_f(1 - i\omega\tau)\mathcal{H}(qa)} \frac{J_0(qr)}{J_0(qa)} \right], \quad (1)$$

where  $m_f = \pi a^2 e \rho$  is the mass of the film and  $\mathcal{H}(qa) = 2J_1(qa)/[qaJ_0(qa)]$ .

We now consider the motion of air between two consecutive films, which is driven by the pressure difference  $P_2 - P_3$ . As  $\lambda \gg d$ , we may consider that the whole air of the unit cell moves as one block with displacement  $z_a$  given by  $-m_a \omega^2 z_a = (P_2 - P_3)\pi b^2$ , where  $m_a$  is the mass of the air in the cell. Moreover, the air in contact with the film and ring is also entrained by their motion. By continuity of displacement, we simply assume that  $z_a$  equals the average displacement of the film and ring:  $z_a = (1 - x)z_c + \frac{2x}{a^2} \int_0^a r z_f(r) dr$ , where  $x = a^2/b^2$  is the fraction of the surface covered by the film. We can then calculate the average displacement  $z_a$  of the unit cell, and relate it to the effective density  $\rho_{\text{eff}}$  by  $\omega^2 \rho_{\text{eff}} z_a = (P_3 - P_1)/d$ . Finally, we obtain an effective density of the foam  $\rho_{\text{eff}} = (1 - \Phi)\rho_a + \Phi'\rho$ , where the frequency-dependent effective liquid volume fraction  $\Phi'$  is given by

$$\Phi' = \frac{\Phi_c + \Phi_f(1 - i\omega\tau)\mathcal{H}(qa)}{1 + \left(x^2 \frac{\Phi_f + \Phi_c}{\Phi_f} - 2x\right)[1 - \mathcal{H}(qa)] - i\omega\tau x \mathcal{H}(qa)}, \quad (2)$$

with  $\Phi_c$  and  $\Phi_f$  the volume fraction of liquid contained in the channels and in the films, respectively:  $\Phi_c + \Phi_f = \Phi$ . Eq. (2) predicts two asymptotic non-dispersive behaviors. At low frequencies,  $\mathcal{H}(qa) \simeq 1$ , hence  $\text{Re}(\Phi') = \Phi$ : the mixture law for  $\rho_{\text{eff}}$  is recovered. At high frequencies,  $\mathcal{H}(qa)$  tends towards 0, leading to  $\text{Re}(1/\Phi') = (1 - x)^2/\Phi_c + x^2/\Phi_f$ . If  $\Phi_f \ll \Phi_c[x/(1 - x)]^2$  (*i.e.* films contain a negligible part of water, but with a non-negligible surface) this last formula reduces to  $x^2/\Phi_f$ : the effective liquid density is governed by the films, as in Kann's model [12].

The transition between the two asymptotic regimes can be inspected by noting that  $1 - \mathcal{H}(qa) \sim_0 -(qa)^2/8$ . Thus, within the approximation  $\Phi_c \gg \Phi_f|1 - 2/x|$ ,



Eq. (2) becomes  $\Phi' \simeq \Phi_c/[1 - (\omega/\omega_0)^2 - i\omega\tau]$ , similar to the response function of an harmonic oscillator with a resonance frequency  $\omega_0^2 = 16\sigma\Phi_f/(\rho a^2 e x^2 \Phi)$  and a damping factor  $x\omega\tau$ . Interestingly, this resonance frequency depends neither on  $a$  nor on  $e$  since  $\Phi_f = n_f \pi a^2 e$ ,  $n_f$  being the number per unit volume of films perpendicular to the direction of propagation. If we consider that there are  $N$  such films per bubble, we obtain  $n_f = 3N(1 - \Phi)/(4\pi R^3)$  and the resonance frequency becomes

$$\omega_0^2 = \frac{12N\sigma(1 - \Phi)}{x^2 \rho \Phi R^3}, \quad (3)$$

which predicts the experimentally observed  $R^{-1.5}$  scaling law. The mechanism of this resonance is different from Minnaert's one: inertia also comes from water, but here the restoring force is due to the tension of the film, not the compressibility of air.

To go beyond and get a quantitative prediction over the full range of frequencies and sizes, we refine the model and include polydispersity, as explained in SM1. Briefly, this amounts to changing  $\mathcal{H}(qa)$  by  $\mathcal{I} = \int \mathcal{H}(qa) a^2 n(a) da / \int a^2 n(a) da$  in the expression (2) of the effective liquid fraction, with  $n(a)$  the distribution of film radii. If we assume that this distribution is log-normal with a median radius  $a_0$ , a polydispersity  $\epsilon_f$  and a total number of films per unit volume  $n_f$ , the model counts a total of nine parameters. Three are known:  $\sigma = 35 \text{ mN/m}$ ,  $\Phi_c = 11\%$ ,  $\epsilon = 0.4$ . Four can be estimated:  $x$ ,  $n_f$ ,  $a_0$  and  $\epsilon_f$ . The surface fraction covered by films in a liquid foam was studied by Princen [24]. He found the following empirical dependence on  $\Phi$ :  $x = 1 - 3.20[7.70 + (1 - \Phi)/\Phi]^{-1/2}$ , which gives  $x = 0.2$  in our case. Then one can estimate that  $n_f = 1620$  films per  $\text{mm}^3$  (assuming  $N = 1$ ),  $a_0 = 15 \mu\text{m}$  (taking an average of 6 films per bubble imposes  $x = 1.5(a_0/R)^2$ ) and  $\epsilon_f = 0.4$  (same polydispersity as for bubble radii). The two remaining parameters were fitted to the experimental data:  $\tau$  governs the width of the resonance,  $e$  the high-frequency effective density. With  $\tau = 10 \mu\text{s}$  and  $e = 70 \text{ nm}$ , the model agrees well with the experimental data (Fig. 5). This value of  $e$  is compatible with the usual measurements of film thickness, of a few tens of nanometers [1]. It is less easy to compare  $\tau$  to any standard measurement, and the local study of the microscopic dissipation mechanisms at high frequency is left as a perspective of our work.

The model also captures well the dependence on  $\Phi$  of the frequency of the maximum of attenuation, as shown in Fig. 2. The polydispersity has to be included to obtain a quantitative comparison (see SM1), but Eq. (3) is sufficient to understand the non-monotonic behavior: for an increasing liquid fraction, the increase of density ( $1/\sqrt{\Phi}$  term, as in the modified-Minnaert relation) is dominated by the shrinkage of the films ( $1/x$  term).

A salient feature of our study is the existence of a negative real part of the density over an extended range of

frequencies (100 to 300 kHz). The mechanism of this negative effective density is well illustrated by looking at the displacement of a film and a liquid channel predicted by (1) (see Fig. 4c). At low frequencies, they move in phase with the incoming pressure. At high frequencies, only the film moves. At intermediate frequencies, while the liquid channel has a small in-phase displacement, the film moves out of phase with an amplitude large enough to compensate for its small inertia. The net average movement of the system is then out of phase, which leads to a negative effective density [28].

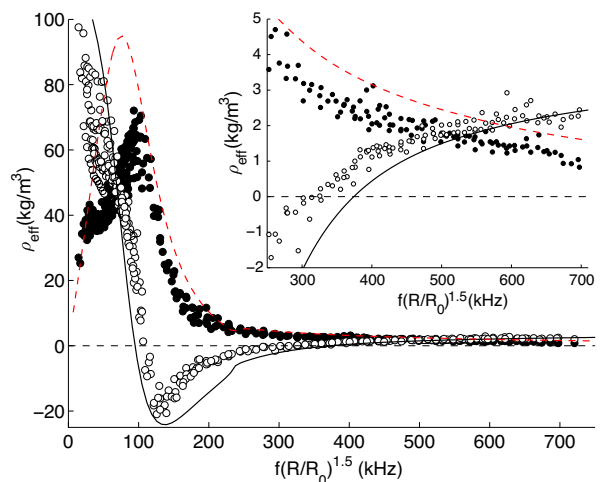


FIG. 5: Comparison between the measured effective complex density ( $\circ$  real part,  $\bullet$  imaginary part) and prediction of the equivalent of Eq. (2) in the polydisperse model (see SM1).

As a conclusion, we have evidenced two regimes for the sound propagation in a liquid foam, separated by a resonance. Our study reconciles the seemingly contradictory results previously reported: a low speed of sound, compatible with Wood's model, at low frequency and small bubble size; a much higher one, slightly lower than that in air, at high frequency and large bubble size; and a resonance in between, with a maximum of attenuation. This rich variety of behaviors is fully captured by a model coupling the motion of air, films and liquid channels.

Finally, we have shown for the first time that liquid foams are naturally acoustic metamaterials, with an effective negative density over an extended range of frequencies and bubble sizes. Moreover, in contrast with most existing metamaterials [25, 26], which are synthetic, highly ordered materials, this property exists even though the foam is isotropic and polydisperse. Our findings could thus bring fresh insight to design metamaterials for applications such as acoustic insulation.

We acknowledge funding support from the Agence Nationale de la Recherche (ANR-11-BS09-001). We thank J.-C. Bacri, C. Gay, F. Graner and A. Saint-Jalmes for fruitful discussions.



- 
- [1] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer, A. Saint-Jalmes, *Foams*, edited by S. J. Cox, Oxford University Press (2013).
  - [2] *Foam Engineering: Fundamentals and Applications*, edited by P. Stevenson, Wiley (2012).
  - [3] J. Blitz, G. Simpson, *Ultrasonic Methods of Non-destructive Testing*, Chapman & Hall (1996).
  - [4] K. Attenborough, *Physics Reports* **82**, 179 (1982).
  - [5] A. S. Dukhin, P. J. Goetz, *Adv. Colloid Interface Sci.* **92**, 72 (2001).
  - [6] R. E. Challis, M. J. W. Powey, M. L. Mather, A. K. Holmes, *Rep. Prog. Phys.* **68**, 1541 (2005).
  - [7] I. I. Goldfarb, I. R. Shreiber, F. I. Vafina, *J. Acoust. Soc. Am.* **92**, 2756 (1992).
  - [8] I. Goldfarb, Z. Orenbach, I. Schreiber, F. Vafina, *Shock Waves* **7**, 77 (1997).
  - [9] N. Mujica, S. Fauve, *Phys. Rev. E* **66**, 021404 (2002).
  - [10] A. B. Wood, *A Textbook of Sound*, Bell (1944).
  - [11] N. T. Moxon, A. C. Torrance, S. B. Richardson, *Appl. Acoust.* **24**, 193 (1988).
  - [12] K. B. Kann, *Colloids Surf. A* **263**, 315 (2005).
  - [13] J. Ding, F.W. Tsaur, A. Lips, A. Akay, *Phys. Rev. E* **75**, 041601 (2007).
  - [14] I. Ben Salem, R. M. Guillermic, C. Sample, V. Leroy, A. Saint-Jalmes, B. Dollet, *Soft Matter*, **9**, 1194 (2013).
  - [15] M. Minnaert, *Phil. Mag.* **16**, 235 (1933).
  - [16] K. W. Commander, A. Prosperetti, *J. Acoust. Soc. Am.* **85**, 732 (1989).
  - [17] V. Leroy, A. Strybulevych, J. H. Page, M. Scanlon, *J. Acoust. Soc. Am.* **123**, 1931 (2008).
  - [18] J. Pierre, F. Elias, V. Leroy, *Ultrasonics* **53**, 622 (2013).
  - [19] J. Pierre, R. M. Guillermic, F. Elias, W. Drenckhan, V. Leroy, *Eur. Phys. J. E* **36**, 113 (2013).
  - [20] A. Maestro, W. Drenckhan, E. Rio, and R. Höhler, *Soft Matter*, **9**, 2531 (2013).
  - [21] S. H. Lee, C. M. Park, Y. M. Seo, Z. G. Wang, C. K. Kim, *Phys. Lett. A* **373**, 4464 (2009).
  - [22] see for instance chapter 4 in L. E. Kinsler, A. R. Frey, A. B. Coppens, J. V. Sanders, *Fundamental of Acoustics*, John Wiley & Sons (2000).
  - [23] I. Cantat, *Phys. Fluids* **25**, 031303 (2013).
  - [24] H. M. Princen, *J. Colloid Interface Sci.* **105**, 150 (1985).
  - [25] N. Fang, D. Xi, J. Xu, M. Ambati, W. Srituravanich, C. Sun, X. Zhang, *Nature Materials* **5**, 452 (2006).
  - [26] M. Yang, G. Ma, Z. Yang, P. Sheng, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 134301 (2013).
  - [27] This is an approximate formula for  $q$ , see discussion in SM1 and J. G. H. Joosten, *J. Chem. Phys.* **80**, 2363 (1984), Y. Couder, J. M. Chomaz, M. Rabaud, *Physica D* **37**, 384 (1989), P. Sens, C. Marques, J. F. Joanny, *Langmuir* **9**, 3212 (1993).
  - [28] A movie showing the oscillations of the film and the ring is available in SM2.

# Resonant Acoustic Propagation and Negative Density in Liquid Foams

## Supplemental material

Juliette Pierre,<sup>1</sup> Benjamin Dollet,<sup>2</sup> and Valentin Leroy<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Laboratoire Matière et Systèmes Complexes, Université Paris-Diderot, CNRS (UMR 7057), Paris, France*

<sup>2</sup>*Institut de Physique de Rennes, Université Rennes 1, CNRS (UMR 6251), Rennes, France*

(Dated: December 30, 2013)

### DISSIPATIVE EFFECTS

The dispersion relation of capillary waves on a soap film:

$$q^2 = \frac{\rho e \omega^2}{2\sigma} \quad (1)$$

neglects dissipation. We checked that our model does not capture the high-frequency regime with  $q$  given by (1), because  $\mathcal{H}(qa) = 2J_1(qa)/[qaJ_0(qa)]$  diverges as soon as  $qa$  is a zero of  $J_0$ . Any source of dissipation adds an imaginary part on  $q$ , which suppresses these divergences and smoothes out the behavior of  $\mathcal{H}(qa)$ . In this Supplemental Material, we describe the various sources of dissipation that we investigated.

Among possible sources of dissipation, the role of liquid viscosity within the film has been previously investigated [1, 2]. It modifies the dispersion relation (1), which becomes  $\bar{\omega}^2 + 2i\zeta\bar{\omega} - 1 = 0$ , with a rescaled frequency  $\bar{\omega} = \omega\sqrt{\rho e/(2\sigma q^2)}$  equal to 1 in the absence of dissipation, and a dimensionless viscous damping  $\zeta = \frac{1}{6}\nu q^3\sqrt{\rho e^5}/2\sigma$ . With  $\nu = 10^{-6}$  m<sup>2</sup>/s the kinematic viscosity of our solution,  $\sigma = 35$  mN/m the surface tension, and taking from the data  $e = 70$  nm, and  $q = 2\pi/a_0$  with  $a_0 = 15$   $\mu$ m, we compute  $\zeta = 2 \times 10^{-6} \ll 1$ , hence  $\bar{\omega} \simeq 1 - i\zeta$  and  $q \simeq (1 + i\zeta)\omega\sqrt{\rho e/2\sigma}$ . It turns out that this imaginary correction is much too small to fit the experimental data (see Fig. 1); in particular, it does not regularize enough the behavior of the effective density at high frequency. Hence we neglected liquid viscosity, and investigated viscous dissipation in the air put into motion close to the film.

To our knowledge, the influence of viscous losses in the air on the vibration of soap films has not been calculated before, hence we had to derive the dispersion relation in this case. Briefly, this is done by solving Navier–Stokes equation in the air and the potential flow for the liquid within the film, which are coupled by the following boundary conditions: continuity of normal and tangential stress, and continuity of normal velocity, at the interface. The calculations give:

$$0 = \left( \frac{1}{2}qe - i\frac{\nu_a q^3 e}{\omega} \right) (\bar{\omega}^2 - 1) + \frac{\rho_a}{\rho} \bar{\omega}^2,$$

with  $\nu_a$  the kinematic viscosity of air. Treating the effect of air as a perturbation, we deduce from this dispersion relation that  $q = (1 + i\zeta_a)\omega\sqrt{\rho e/2\sigma}$  with  $\zeta_a =$

$\eta_a/\sqrt{\rho e \sigma/2}$ . With  $\eta_a = 1.8 \times 10^{-5}$  Pa s the dynamic viscosity of air, we compute  $\zeta_a = 0.02$ , which is four orders of magnitude larger than  $\zeta$ : viscous dissipation in the liquid is negligible compared to that in air in our range of experimental parameters. We found that including this correction gives a satisfactory agreement between the data and the model at high frequency, with a smooth behavior of the effective density (see Fig. 1). However, it is still insufficient to fit the data over the full range of frequency and size. In particular, it predicts a much too peaked resonance, and an increase of the real part of the effective density, which is not seen in experiments (Fig. 5 in the Letter). There is thus another source of dissipation which dominates at low frequency.

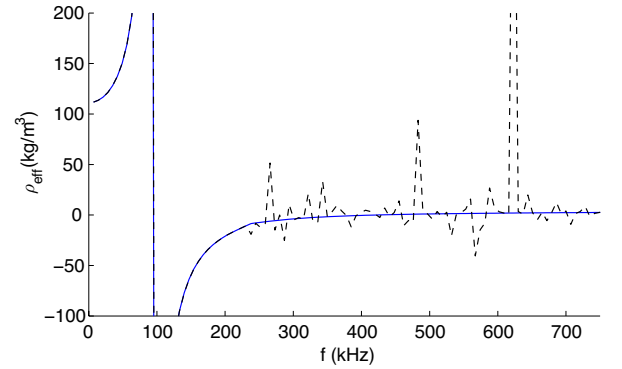


FIG. 1: Prediction of the model for the real part of the effective density as a function of frequency for two sources of dissipation: viscous losses in the liquid (dashed line), and viscous losses in the air (solid line). The dissipation in the meniscus is neglected ( $\xi = 0$ ) and the other parameters are as in Fig. 5 of the Letter.

It is well known in foam rheology that the relative motion of a film and a Plateau border involves a large dissipation in the transition region in between [3]. It is thus likely the main source of dissipation in our low frequency range. However, it has not been investigated for frequencies higher than 1 kHz. Hence, we include this source of dissipation phenomenologically, by simply assuming that there is a force on the Plateau border that opposes its motion relative to the film in contact, of the form  $-2\pi a \xi (\partial^2 h_f / \partial t \partial r)_{r=a}$ , with a friction coefficient  $\xi$ , from which we construct a viscous time  $\tau = \xi/\sigma$  considered as a free fitting parameter.

## EXTENSION OF THE MODEL TO THE POLYDISPERSE CASE

The monodisperse model (Eq. (2) of the Letter) does not lead to a good comparison with the experimental data. In particular, the regime of negative effective density cannot be described properly (see Fig. 2). A refined model that takes the polydispersity into account is thus needed.

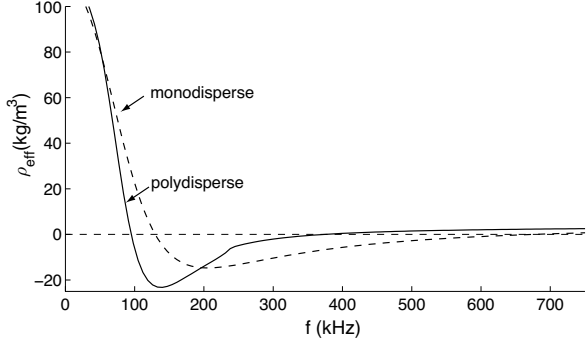


FIG. 2: Comparison of the monodisperse and polydisperse models for the effective density (real part) as a function of frequency for  $R = 40 \mu\text{m}$ ; see the Letter for the value of the other parameters.

Let us consider a thin slice of foam oriented perpendicularly to the direction of propagation of the acoustic wave. We note  $n(a)da$  the number of films per unit volume whose radius is between  $a$  and  $a + da$  and whose orientation is perpendicular to the direction of propagation. We choose the volume  $V$  of the slice such that there is in average one film across its thickness:  $V \int \pi a^2 n(a) da = xS$ , where  $S$  is the surface of the considered slice. Each film of radius  $a$  has a profile given by  $z_f(a; r) = A(a)J_0(qr) + \Delta P/(\rho e \omega^2)$ , *i.e.* as in the monodisperse case but with  $A$  that depends on  $a$ . For simplicity, we consider that all the films have the same thickness  $e$ , hence  $q$  does not depend on  $a$ . This approximation is encouraged by the good collapse of the experimental data with a scaling on  $R$  only, indicating that film thickness variations with ageing time can be neglected. The  $A(a)$  constant is given by continuity of displacement on the boundary of each film:  $z_f(a; r = a) = z_c$ , where  $z_c$  is the displacement of all the liquid channels. We assume here that the network of liquid channels in the slice move as a block, with no deformation. These channels, of total mass  $m_c$ , are driven by the pressure difference  $\Delta P$  and by the traction of all the films, leading to  $-m_c \omega^2 z_c = -(1-x)S\Delta P - 4\pi\sigma(1-i\omega\tau)V \int an(a)da \frac{\partial z_f}{\partial r}(a; r = a)$ . Dividing by  $V$ , and noting that  $xS/V = \int \pi a^2 n(a) da = \Phi_f/e$ , we get

$$-\rho\Phi_c\omega^2 z_c = -\frac{(1-x)\Phi_f\Delta P}{xe} + 4\pi\sigma(1-i\omega\tau)\Sigma, \quad (2)$$

with  $\Sigma = \int an(a)da A(a)qJ_1(qa)$ . Continuity of displacement gives the second condition on  $z_c$ :  $z_c = A(a)J_0(qa) + \Delta P/(2\sigma q^2)$ , hence:

$$\Sigma = \frac{1}{2\pi} \left( q^2 z_c - \frac{\Delta P}{2\sigma} \right) \int n(a)da \pi a^2 \mathcal{H}(qa). \quad (3)$$

Inserting Eq. (3) into Eq. (2), we get

$$z_c = -\frac{\Delta P}{\rho e \omega^2} \frac{(x-1)/x - (1-i\omega\tau)\mathcal{I}}{\Phi_c/\Phi_f + (1-i\omega\tau)\mathcal{I}},$$

with  $\mathcal{I} = (e/\Phi_f) \int \mathcal{H}(qa)n(a)\pi a^2 da$ . The profile of a film of radius  $a$  can then be calculated, from which we deduce the average displacement of a film of radius  $a$ :

$$\begin{aligned} \langle z_f(a) \rangle &= \frac{1}{\pi a^2} \int_0^a 2\pi r dr z_f(a; r) \\ &= \frac{\Delta P}{\omega^2 \rho e} \left[ 1 - \mathcal{H}(qa) \frac{\Phi_c/\Phi_f - (1-x)/x}{\Phi_c/\Phi_f + (1-i\omega\tau)\mathcal{I}} \right]. \end{aligned}$$

Then the average amplitude of displacement of the films and liquid channels, which we assume identical to the air displacement  $z_a$ , can be calculated:

$$\begin{aligned} z_a &= (1-x)z_c + \frac{V}{S} \int n(a)da \pi a^2 \langle z_f(a) \rangle \\ &= \frac{\Delta P S}{V \omega^2 \rho} \frac{1 + \left( x^2 \frac{\Phi_f + \Phi_c}{\Phi_f} - 2x \right) (1-\mathcal{I}) - i\omega\tau x \mathcal{I}}{\Phi_c + \Phi_f (1-i\omega\tau)\mathcal{I}}, \end{aligned}$$

leading at the same effective density as in the monodisperse case with  $\mathcal{I}$  instead of  $\mathcal{H}$  (see Eq. (2) in the Letter).

Assuming a lognormal distribution for the films radii:  $n(a) = \exp\{-[\ln(a/a_0)]^2/2\epsilon_f^2\}/(a\epsilon_f\sqrt{2\pi})$ , we can use the relation  $\int n(a)a^p dp = n_f a_0^p \exp(p^2 \epsilon_f^2/2)$  where  $n_f$  is the number of films per unit volume,  $a_0$  their median radius and  $\epsilon_f$  their polydispersity. The low-frequency limit of  $\Phi'$  then becomes

$$\Phi' \simeq \frac{\Phi_c}{1 - (\omega/\omega_0)^2 - ix\omega\tau}, \quad (4)$$

with a polydisperse resonance angular frequency given by

$$\omega_0^2 = \frac{12N\sigma(1-\Phi)}{x^2 \rho \Phi R^3 \exp(9\epsilon^2/2 + 4\epsilon_f^2)}. \quad (5)$$

Note that, as in the monodisperse case, the radii and thicknesses of the films are not parameters of the resonance. On the other hand, the polydispersity plays a role, and decreases significantly the resonance frequency (Fig. 2). It is therefore necessary to include it to get a good prediction of the resonance, and also of the extent of the range of negative density.

The maximum of attenuation of the acoustic waves in the foam is reached when the real part of the density is minimum and negative, which is given by  $\omega_{\max} =$

$\omega_0\sqrt{1+x\omega\tau}$ . We used this relation in Fig. 2 of the Letter, in which  $\omega_{\max}$  is reported as a function of  $\Phi$ .

- [2] P. Sens, C. Marques, J. F. Joanny, *Langmuir* **9**, 3212 (1993).  
 [3] I. Cantat, *Phys. Fluids* **25**, 031303 (2013).

- 
- [1] J. G. H. Joosten, *J. Chem. Phys.* **80**, 2363 (1984).

## 4.4 Perspectives

En découvrant que les mousses liquides avaient une densité effective négative sur une gamme de fréquences assez large, nous avons fait entrer ce matériau dans la famille des métamatériaux acoustiques. Des métamatériaux acoustiques conçus à partir de membranes ont déjà été développés par le passé. On peut mentionner la double négativité obtenue par une équipe coréenne avec une série de membranes et de résonateurs de Helmholtz [81], ou les “dark acoustic metamaterials” de l’équipe de Ping Sheng à Hong-Kong [84]. Mais les mousses ont plusieurs atouts séduisants. En premier lieu, on pourrait presque les qualifier de “métamatériaux naturels”, dans la mesure où on les trouve dans la nature. Au delà de la boutade, il faut tout de même noter qu’il s’agit ici d’un milieu hétérogène obtenu sans grande précaution, alors qu’un métamatériau est d’ordinaire l’objet d’une fabrication attentive, en suivant des prescriptions précises pour s’assurer d’être dans l’étroite fenêtre des paramètres qui donnent l’effet escompté. C’est le signe qu’on a ici affaire à des effets forts et robustes, et qu’il reste sans doute de la marge pour les rendre encore plus forts en optimisant la structure et la composition de la mousse. Mais surtout, les mousses sont des milieux  $3D$ , alors que les démonstrations de densité négative sont très souvent limitées à des structures unidimensionnelles. Nous n’en sommes pas encore à la double-négativité, mais on a un milieu qui exhibe une densité négative quel que soit l’angle d’incidence. Cette isotropie est un paramètre important pour espérer développer une lentille de Pendry [7], par exemple.

La très forte atténuation à basses fréquences dans les mousses est bien entendu intéressante dans la perspective d’applications en isolation phonique. C’est le cœur du projet que nous voulons mener à MSC. Pour faire des mousses des matériaux stables, utilisables pour des applications d’isolation phonique, il faudra les solidifier. Obtenir des mousses solides ayant la même structure qu’une mousse liquide (en particulier, conservant ses films) est en ce moment l’objet d’une activité intense dans plusieurs groupes de recherche. Nous nous appuyons sur notre collaboration avec Wiebke Drenckhan, du LPS d’Orsay, ainsi que sur l’arrivée récente de Matthieu Roché au laboratoire MSC. Mais au delà de la problématique de la solidification, il reste à comprendre comment les ondes acoustiques sont dissipées dans la mousse. Certes, nous avons mis en évidence un mécanisme de densité négative, qui donne lieu à des ondes évanescentes. Mais la source de la dissipation n’est pas encore identifiée. Les résultats à basses fréquences montrent qu’il faut inclure une viscosité locale  $\eta_{\text{mic}}$  dont la signification n’est pas claire, et les résultats hautes fréquences ne s’interprètent bien qu’avec un temps caractéristique de dissipation,  $\tau$ , associé à la dissipation par les films, mais dont on ne connaît pas l’origine physique exacte. Ce qui paraît acquis, c’est que la dissipation thermique ne suffit pas à expliquer l’atténuation. On peut revenir à ce propos à la loi d’échelle identifiée par Mujica et Fauve. Obtenir que  $\text{Im}(k)/\text{Re}(k)$  varie en  $R^2\omega$  est certes un argument en faveur d’une atténuation thermique. Mais on a constaté que, du fait de la résonance de membrane, les données suivaient une loi en  $\text{Im}(k)/\text{Re}(k) \sim R^{1.5}\omega$ . Les exposants sont donc très proches et, étant donné la faible amplitude des rayons moyens explorés, on peut tout à fait interpréter les données de Mujica et Fauve avec notre modèle, sans faire intervenir la dissipation thermique.

Revenons sur le temps caractéristique  $\tau$  que nous avons dû introduire dans le modèle.

En regardant ce que prédit le modèle de membrane à très basses fréquences, on trouve une atténuation réduite de la forme  $\text{Im}(k)/\text{Re}(k) = (x\tau/2)\omega$ . Cela fait donc une loi linéaire en fréquence, tout à fait compatible avec le mécanisme de viscosité locale qui prévoyait une loi en  $(2\eta_{\text{mic}}/3P_0)\omega$  (voir l'équation (4.6)). En supposant qu'il s'agit en fait de la même source de dissipation, le  $\tau = 10\ \mu\text{s}$  trouvé pour les expériences à hautes fréquences donne un  $\eta_{\text{mic}}$  de l'ordre de  $0.15\ \text{Pa}\cdot\text{s}$ , donc tout à fait comparable aux ordres de grandeurs trouvés à basses fréquences (voir la figure 4.10). Il semble donc possible que la dissipation due aux films soit également importante à basses fréquences. Cela donne une motivation supplémentaire à l'identification de l'origine de  $\tau$ . Nos pistes actuelles nous mènent vers une exploration du rôle éventuel du ménisque, la zone de jonction entre le film et le bord de Plateau, ou des mouvements locaux de l'air au bord du film.

Une autre perspective est, dans la suite du projet ANR SAMOUSSE, le développement d'une sonde acoustique pour les mousses. Le fait que la vitesse à hautes fréquences soit sensible à l'épaisseur des films est particulièrement intéressant. Il sera nécessaire de réaliser plus d'expériences pour affiner le modèle, et pour déterminer si l'on peut déduire une valeur moyenne d'épaisseur de film d'une mesure acoustique. Si cela se confirme, on disposera d'un outil pour inspecter le comportement des films dans une mousse. Parmi les techniques actuelles pour caractériser les mousses liquides, aucune ne donne d'informations sur les films : la conductivité n'y est pas sensible, et les rayons X ne les voient pas. Pourtant, répétons-le, les films sont essentiels à l'existence d'une mousse. Un autre avantage d'une mesure acoustique, c'est qu'elle peut en principe être très rapide. Par exemple, si la vitesse du son est de l'ordre de  $200\ \text{m/s}$ , il ne faut que  $25\ \mu\text{s}$  pour traverser  $5\ \text{mm}$  de mousse. Avec cette échelle de temps, on peut même envisager sonder la mousse pendant sa formation, et peut-être ainsi mieux comprendre pourquoi certaines solutions sont propices à la formation d'une bonne mousse, alors que d'autres ne le sont pas.





# Conclusion

Nos recherches ont montré, expérimentalement, que l’approximation des diffusions indépendantes (ISA) donnait une très bonne description de la propagation des ondes acoustiques dans un milieu bulleux monodisperse, y compris à la fréquence de résonance des bulles (Article 1). Ce résultat surprenant va à l’encontre des travaux précédents, et suggère que les processus de diffusion “en boucles” sont en fait bien pris en compte par l’ISA. En revanche, de fortes déviations à l’ISA ont été mises en évidence dans le cas de milieux bulleux polydisperses présentant des corrélations positionnelles non triviales (Articles 2 et 3). Si ces résultats limitent, à court terme, l’utilisation de méthodes acoustiques pour déterminer la distribution en taille des bulles dans un milieu élastique opaque (comme la pâte à pain), ils ouvrent des perspectives plus larges. En effet, cela signifie que, à condition d’avoir un modèle complet, des mesures acoustiques permettraient de remonter non seulement à la distribution en taille des bulles, mais également à leur répartition spatiale.

Notre exploration de l’acoustique des milieux bulleux nous a également conduit à la création de nouveaux milieux acoustiques, tels que les cristaux phononiques de bulles (Article 5). En exploitant la résonance basse fréquence des bulles, on peut obtenir des milieux de très faibles épaisseurs capables de bloquer la transmission des ondes acoustiques (Article 4), voire d’absorber la majeure partie de l’énergie acoustique incidente (Article 7). Les applications en acoustique aérienne et sous-marine sont alléchantes.

Enfin, nos expériences sur l’acoustique des mousses liquides nous ont permis d’établir un cadre qui réconcilie les différentes observations contradictoires qui existaient sur ce système. Il y a bien deux vitesses de phase du son dans une mousse liquide. À très basses fréquences, la densité effective est bien la densité moyenne du milieu, et la loi de Wood est vérifiée (Article 8). Mais à plus hautes fréquences, seul le liquide contenu dans les films contribue à la densité effective, donnant une vitesse de phase plus proche de celle de l’air. Ces deux régimes sont séparés par une fréquence pour laquelle inertie des bords de Plateau et élasticité des films s’équilibrent (Article 10). Comme pour les liquides bulleux, ces résultats ouvrent des perspectives à la fois pour la spectroscopie acoustique des mousses et pour l’utilisation de mousses comme nouveaux matériaux acoustiques.

Pour conclure ce manuscrit, je voudrais dire un mot sur l’acoustique de la matière molle. Le souci de travailler avec des échantillons les mieux caractérisés possibles a été un point commun de tous les résultats expérimentaux exposés ici. Cela peut paraître une banalité : tout physicien expérimentateur s’efforce de travailler avec l’échantillon le mieux contrôlé possible,

afin de tester les modèles sans se réfugier derrière un paramètre mal contrôlé. Mais quand il s'agit de milieux aussi peu stables que les liquides bulleux ou les mousses liquides, les choses se compliquent. Et c'est là que la matière molle entre en jeu. Les physiciens de la matière molle ont appris à fabriquer et caractériser ces milieux éphémères, afin de pouvoir les étudier correctement. Et dans certains cas, on arrive même à les stabiliser. Pour les liquides bulleux, par exemple, on est passé des fluides à seuil bulleux, stables sur une dizaine d'heures au maximum, à des élastomères bulleux, complètement stables.

Mon impression, peut-être fausse, est que les acousticiens considèrent souvent avec dédain ces matériaux mous et fragiles. Pourtant, en se donnant les moyens expérimentaux adéquats, on s'ouvre un domaine vaste et passionnant à explorer.

## Annexe A

# Milieu effectif unidimensionnel

Le but de cette annexe est de proposer une situation simple, en configuration 1D, pour retrouver la notion de milieu effectif et la loi de Wood. Prenons le système de la figure A.1 de gauche : un milieu 0, caractérisé par son nombre d'onde  $k_0$  et son impédance  $Z_0$ , est zébré de couches séparées d'une distance  $d$ , elles-mêmes caractérisées par leurs coefficients de réflexion et transmission  $r$  et  $t$ . La question est de savoir si, à la limite  $d \ll \lambda$ , on peut décrire cette succession de couches comme un seul milieu homogène d'épaisseur  $L = Nd$  ( $N$  étant le nombre de couches) et de nombre d'onde et impédance effectifs  $k$  et  $Z$ . La situation est très simple, mais elle donne en fait lieu à des calculs assez compliqués, et on a tôt fait de s'y perdre.

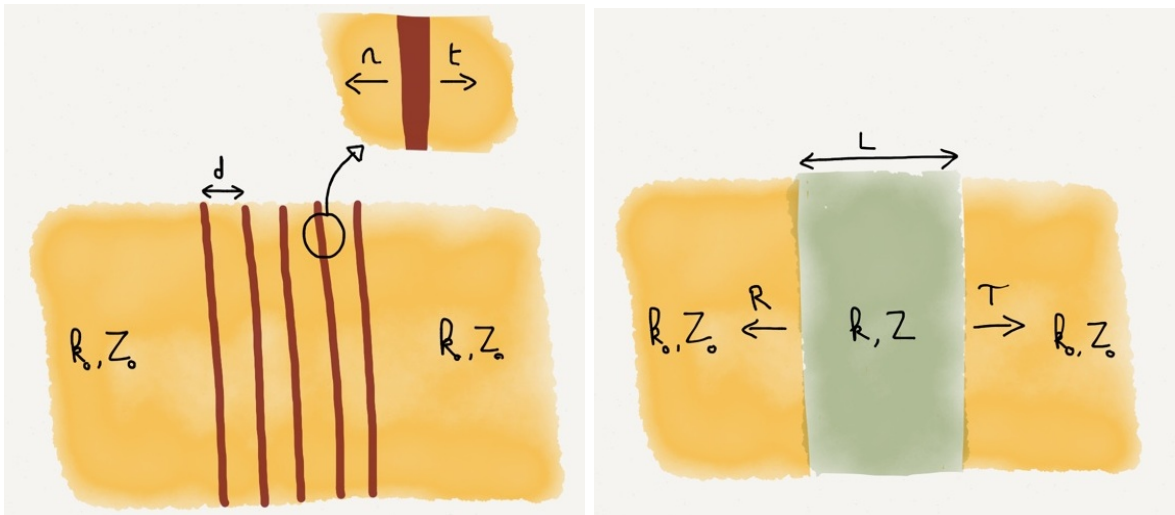


FIGURE A.1 – Un milieu 0 avec une succession de fines couches (gauche) est-il équivalent à un milieu effectif (droite) ? Si oui, comment calculer l'impédance et le nombre d'onde dans ce milieu effectif ?

Notons que plutôt que de décrire les milieux par leur masses volumiques et compressibilités (comme en 1.1) on a ici choisi, par commodité, les jeux de paramètres  $(k_0, Z_0)$  pour le milieu hôte 0 et  $(r, t)$  pour les hétérogénéités. Tout peut bien sûr se réécrire en fonction de  $\rho$  et  $\chi$

puisque les facteurs de transmission et réflexion ne dépendent, outre de l'épaisseur des couches, que des impédances et nombres d'onde, qui eux-mêmes s'écrivent simplement  $k = \omega\sqrt{\rho\chi}$  et  $Z = \sqrt{\rho/\chi}$  (voir l'application en fin d'annexe). Utiliser  $r$  et  $t$  permet en outre d'appliquer les calculs de cette annexe aux plans de bulles considérés dans le chapitre 3.

Si milieu effectif il y a (figure A.1 de droite), une onde de pression est réfléchiée et transmise suivant les lois :

$$\mathcal{R} = x \left[ 1 - (1 - x^2) \frac{e^{2ikL}}{1 - x^2 e^{2ikL}} \right], \quad (\text{A.1a})$$

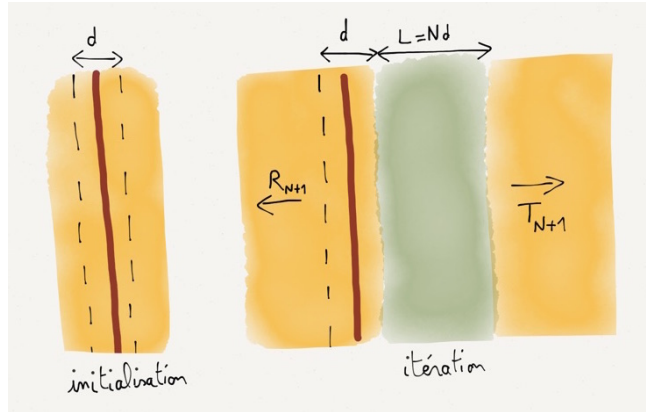
$$\mathcal{T} = (1 - x^2) \frac{e^{ikL}}{1 - x^2 e^{2ikL}}, \quad (\text{A.1b})$$

avec  $x = (Z - Z_0)/(Z + Z_0)$ . Ces expressions tiennent compte des réflexions multiples au sein de la tranche d'épaisseur  $L$ . Notons que pour une atténuation forte ( $x^2 \exp(ikL) \ll 1$ ), on retrouve le coefficient de réflexion  $x = (Z - Z_0)/(Z + Z_0)$  pour une interface simple, ainsi que le facteur de transmission simple  $(1 - x^2)e^{ikL} = 4Z_0 Z e^{ikL}/(Z + Z_0)^2$ .

Les expressions (A.1) ayant une forme compliquée, on va plutôt étudier le rapport des coefficients, qui s'écrit

$$\frac{\mathcal{R}}{\mathcal{T}} = -2i \sin(kL) \frac{x}{1 - x^2}. \quad (\text{A.2})$$

FIGURE A.2 – Initialisation (gauche) et récurrence (droite).



On va vérifier par récurrence que notre multicouche vérifie bien la relation (A.2). L'initialisation se fait avec une seule couche, comme sur la figure A.2 de gauche. On trouve alors que<sup>1</sup>

$$\mathcal{R}_1 = r e^{ik_0 d}, \quad (\text{A.3})$$

$$\mathcal{T}_1 = t e^{ik_0 d}, \quad (\text{A.4})$$

ce qui impose la relation suivante entre les coefficients pour une couche :

$$\frac{r}{t} = -2i \sin(kd) \frac{x}{1 - x^2}. \quad (\text{A.5})$$

1. Remarquons qu'avec cette notation, l'épaisseur du milieu 1 n'intervient pas ; elle est prise en compte dans les coefficients  $r$  et  $t$ .

Pour la récurrence, on veut montrer que si  $\mathcal{R}_N/\mathcal{T}_N$  vérifie la relation (A.2), alors  $\mathcal{R}_{N+1}/\mathcal{T}_{N+1}$  la vérifie aussi. Le passage de  $N$  à  $N+1$  se fait par un simple calcul de réflexion multiple entre la couche ajoutée et les  $N$  couches précédentes. Comme indiqué sur la fig. A.2 de droite, il est plus astucieux d'ajouter les couches par la gauche (la propagation se faisant de gauche à droite). On obtient

$$\mathcal{R}_{N+1} = re^{ik_0d} + e^{ik_0d} \frac{t^2 \mathcal{R}_N e^{i2k_0d}}{1 - r \mathcal{R}_N e^{i2k_0d}}, \quad (\text{A.6})$$

$$\mathcal{T}_{N+1} = \frac{\mathcal{T}_N t e^{ik_0d}}{1 - r \mathcal{R}_N e^{i2k_0d}}. \quad (\text{A.7})$$

Tous calculs faits, on trouve que (A.2) est vérifiée au rang  $N+1$  si

$$\frac{te^{ik_0d}}{1 - x^2} \left( e^{-ikd} - x^2 e^{ikd} \right) = 1. \quad (\text{A.8})$$

On a donc deux conditions nécessaires pour que la description en terme de milieu effectif fonctionne bien : (A.5) et (A.8). Ces conditions donnent en principe les valeurs de  $k$  et  $Z$  en fonction de  $r$  et  $t$ . On va se limiter au cas des grandes longueurs d'onde et considérer que  $kd \ll 1$ . En outre, on passe utilement de  $(k, Z)$  à  $(\rho, \chi)$  en notant que

$$k \left( \frac{x}{1 - x^2} \right) = \frac{k_0}{4} \left( \frac{\rho}{\rho_0} - \frac{\chi}{\chi_0} \right), \quad (\text{A.9})$$

$$k \left( \frac{1 + x^2}{1 - x^2} \right) = \frac{k_0}{2} \left( \frac{\rho}{\rho_0} + \frac{\chi}{\chi_0} \right). \quad (\text{A.10})$$

Les deux conditions (A.5) et (A.8) s'écrivent alors :

$$\frac{\rho}{\rho_0} - \frac{\chi}{\chi_0} = \frac{2i}{k_0d} \times \frac{r}{t}, \quad (\text{A.11a})$$

$$\frac{\rho}{\rho_0} + \frac{\chi}{\chi_0} = \frac{2i}{k_0d} \left[ \frac{1}{t} - 1 \right] + 2, \quad (\text{A.11b})$$

ce qui donne

$$\frac{\chi}{\chi_0} = 1 + \frac{i}{k_0d} \left( \frac{1 - t - r}{t} \right), \quad (\text{A.12a})$$

$$\frac{\rho}{\rho_0} = 1 + \frac{i}{k_0d} \left( \frac{1 - t + r}{t} \right). \quad (\text{A.12b})$$

On retrouve dans ces équations l'image d'une diffusion "monopolaire" qui pilote la compressibilité, et d'une diffusion "dipolaire" qui pilote la masse volumique. En effet, on vérifie que si  $t = 1 + r$  (l'équivalent 1D du monopolaire), la masse volumique n'est pas affectée par la présence des couches : (A.12b) prédit que  $\rho = \rho_0$ . De la même façon, si  $t = 1 - r$ , la compressibilité n'est pas affectée :  $\chi = \chi_0$  d'après (A.12a).

La relation (A.2) sur le rapport entre réflexion et transmission par le multicouche n'est qu'une relation nécessaire. Il faut encore vérifier que la transmission (ou la réflexion) à travers notre milieu effectif candidat décrit par les équations (A.12) se comporte correctement.

**L'initialisation** est rapide : si la condition (A.8) est remplie, on trouve immédiatement que la transmission à travers la simple couche de la figure A.2 de gauche se met bien sous la forme (A.1b).



**L'itération** est un peu plus calculatoire. Si pour  $N$  couches on a bien une transmission donnée par (A.1b) et une réflexion donnée par (A.1a), avec une épaisseur  $L = Nd$ , on vérifie que la transmission à travers  $N + 1$  couches, donnée par (A.7), se met elle aussi sous la forme (A.1b), avec une épaisseur  $L = (N + 1)d$ , si on utilise pour  $r$  et  $t$  les deux conditions (A.5) et (A.8).

### Tranche de matériau homogène

Dans le cas particulier où les couches sont des tranches de matériau 1 d'épaisseur  $e$ , on calcule :

$$r = e^{-ik_0e} x_1 \left[ 1 - (1 - x_1^2) \frac{e^{2ik_1e}}{1 - x_1^2 e^{2ik_1e}} \right] \quad (\text{A.13a})$$

$$t = e^{-ik_0e} (1 - x_1^2) \frac{e^{ik_1e}}{1 - x_1^2 e^{2ik_1e}}, \quad (\text{A.13b})$$

avec  $x_1 = (Z_1 - Z_0)/(Z_1 + Z_0)$  et où l'on a retiré un déphasage  $k_0e$  parce que les calculs précédents ne tenaient pas compte de l'épaisseur des couches. De façon identique à (A.2), on trouve que

$$\frac{r}{t} = -2i \sin(k_1e) \frac{x_1}{1 - x_1^2}, \quad (\text{A.14})$$

qui pour  $k_1e \ll 1$  se réduit à

$$\frac{r}{t} = -2ik_1e \frac{x_1}{1 - x_1^2}. \quad (\text{A.15})$$

Et on a également, pour  $k_0e, k_1e \ll 1$ ,

$$\frac{1 - t}{t} = ik_0e - ik_1e \frac{1 + x_1^2}{1 - x_1^2}, \quad (\text{A.16})$$

de sorte que (A.12) deviennent

$$\frac{\chi}{\chi_0} = 1 - \frac{e}{d} + \frac{e\chi_1}{d\chi_0} \quad (\text{A.17a})$$

$$\frac{\rho}{\rho_0} = 1 - \frac{e}{d} + \frac{e\rho_1}{d\rho_0}, \quad (\text{A.17b})$$

ce qui redonne bien la loi de mélange puisque la fraction volumique de 1 s'écrit  $\Phi = e/d$ . Notons qu'on a utilisé les relations  $(k_1Z_0)/(k_0Z_1) = \chi_1/\chi_0$  et  $(k_1Z_1)/(k_0Z_0) = \rho_1/\rho_0$ .

### Plan de diffuseurs

Pour un plan de diffuseurs avec des fonctions de diffusions  $f_0$  et  $f_1$ , on peut montrer que si on néglige les corrélations de positions, transmission et réflexion sont données par

$$t = 1 + \frac{iK(f_0 + f_1)}{1 - iK(f_0 + f_1)}, \quad (\text{A.18a})$$

$$r = \frac{iK(f_0 - f_1)}{1 - iK(f_0 + f_1)}, \quad (\text{A.18b})$$

avec  $K = 2\pi/(k_0 d^2)$  ( $d$  étant ici la distance entre les diffuseurs du plan). On a alors  $1/t = 1 - iK(f_0 - f_1)$  et  $r/t = iK(f_0 + f_1)$  qui, injectées dans (A.12) permettent de retrouver, comme attendu, le modèle de Waterman et Truell pour un nombre de diffuseurs par unité de volume  $n = 1/d^3$  (voir eq. (1.12)).

## Annexe B

# Diffusion acoustique par une inclusion sphérique

Cette annexe traite du problème de la diffusion d'une onde acoustique longitudinale par un diffuseur sphérique. On va suivre la démarche classique dite de ECAH, du nom des quatre auteurs ayant traité ce problème : Epstein et Carhart [85], et Allegra et Hawley [86]. Par souci de généralité, on va considérer une inclusion double, comme schématisé dans la figure B.1, et s'autoriser des matériaux solides. On a donc une sphère de rayon  $R_0$  d'un matériau caractérisé par un module d'onde longitudinale  $B$ , un module de cisaillement  $G$  et par une masse volumique  $\rho$ , entourée d'une enveloppe de rayon  $R_1$  d'un matériau caractérisé par  $B'$ ,  $G'$ ,  $\rho'$ , elle-même entourée d'un milieu infini constitué d'un matériau avec  $B''$ ,  $G''$ ,  $\rho''$ . On envoie une onde plane de compression sur cet objet et on veut déterminer les ondes de compression et de cisaillement qui en ressortent. On prendra les notations de Allegra et Hawley [86], mais en négligeant les ondes thermiques.

Notons  $\Phi$  le champ de compression et  $\Psi$  celui de cisaillement. On utilise le développement d'une onde plane sur la base des ondes sphériques :

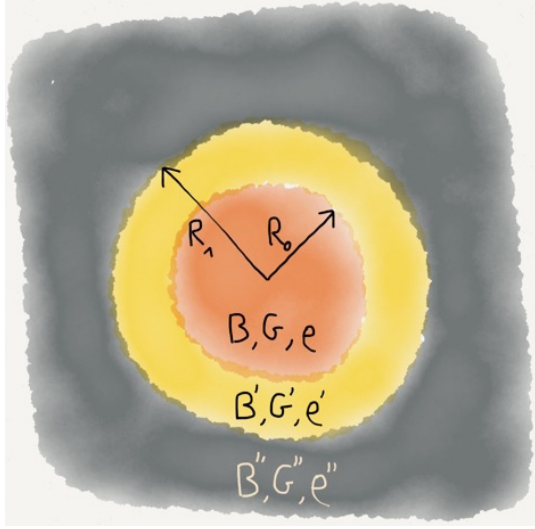
$$e^{ikz} = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) j_n(kr) P_n(\cos \theta) \quad (\text{B.1})$$

où  $j_n$  désigne les fonctions de Bessel sphériques de première espèce et  $P_n$  les polynômes de Legendre. On cherche des solutions sous la forme suivante (voir équations (4) dans [86]).

Pour  $r \leq R_0$  :

$$\Phi = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) A_n j_n(kr) P_n(\cos \theta) \quad (\text{B.2a})$$

$$\Psi = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) \mathcal{A}_n j_n(\kappa r) P'_n(\cos \theta) \quad (\text{B.2b})$$



### Notations

$$\begin{aligned}
 k &= \omega \sqrt{\frac{\rho}{B}} & \text{et} & & kR_0 &= a \\
 k' &= \omega \sqrt{\frac{\rho'}{B'}} & \text{et} & & k'R_0 &= a', \quad k'R_1 = b' \\
 \kappa &= \omega \sqrt{\frac{\rho}{G}} & \text{et} & & \kappa R_0 &= \alpha, \quad \kappa R_1 = \beta \\
 \kappa' &= \omega \sqrt{\frac{\rho'}{G'}} & \text{et} & & \kappa' R_0 &= \alpha', \quad \kappa' R_1 = \beta' \\
 k'' &= \omega \sqrt{\frac{\rho''}{B''}} & \text{et} & & k'' R_1 &= b'' \\
 \kappa'' &= \omega \sqrt{\frac{\rho''}{G''}} & \text{et} & & \kappa'' R_1 &= \beta''
 \end{aligned}$$

FIGURE B.1 – La structure de la cellule de diffusion et quelques notations. Les  $k$ ,  $a$ , et  $b$  correspondent aux ondes de compression, tandis que les  $\kappa$ ,  $\alpha$  et  $\beta$  sont pour celles de cisaillement. Les “primes” sont pour le milieu intermédiaire, et les “secondes” pour le milieu extérieur.

Pour  $R_0 \leq r \leq R_1$  :

$$\Phi = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) [A'_n j_n(k'r) + H'_n h_n(k'r)] P_n(\cos \theta) \quad (\text{B.3a})$$

$$\Psi = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) [\mathcal{A}'_n j_n(\kappa'r) + \mathcal{H}'_n h_n(\kappa'r)] P'_n(\cos \theta) \quad (\text{B.3b})$$

Pour  $r \geq R_1$  :

$$\Phi = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) [j_n(k''r) + H''_n h_n(k''r)] P_n(\cos \theta) \quad (\text{B.4a})$$

$$\Psi = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) [\mathcal{H}''_n h_n(\kappa''r)] P'_n(\cos \theta) \quad (\text{B.4b})$$

où  $h_n$  sont les fonctions de Hankel sphériques. Avec ce système d'équations, on émet une onde plane de compression d'amplitude 1 sur le diffuseur et on s'intéresse à l'onde de compression qui ressort avec une amplitude  $H''$  et à celle de cisaillement avec une amplitude  $\mathcal{H}''$ . Dans ce diffuseur double il y a un système d'ondes avec les 6 coefficients  $A$ ,  $\mathcal{A}$ ,  $A'$ ,  $\mathcal{A}'$ ,  $H'$ ,  $\mathcal{H}'$ . On va écrire les 4 équations de continuité de  $v_r$ ,  $v_\theta$ ,  $\sigma_{rr}$ ,  $\sigma_{r\theta}$  aux deux limites  $R_0$  et  $R_1$ , soient 8 équations (le compte est bon).

Les vitesses et contraintes s'écrivent en fonction des champs  $\Phi$  et  $\Psi$  :<sup>1</sup>

$$v_r = (-i\omega) \left( -\frac{\partial\Phi}{\partial r} + \frac{1}{r \sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} (\Psi \sin\theta) \right) \quad (\text{B.5a})$$

$$v_\theta = (-i\omega) \left( -\frac{1}{r} \frac{\partial\Phi}{\partial\theta} - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r\Psi) \right) \quad (\text{B.5b})$$

$$\sigma_{rr} = -\omega^2 \rho \Phi + 2G \left[ k^2 \Phi + \frac{\partial^2 \Phi}{\partial r^2} + \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} \left( \sin\theta \left( \frac{\Psi}{r^2} - \frac{1}{r} \frac{\partial\Psi}{\partial r} \right) \right) \right] \quad (\text{B.5c})$$

$$\sigma_{r\theta} = -G \left[ -\frac{2}{\partial\theta} \left( \frac{1}{r} \frac{\partial\Phi}{\partial r} - \frac{\Phi}{r^2} \right) - \left( \frac{\partial^2 \Psi}{\partial r^2} - \frac{2\Psi}{r^2} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{1}{\partial\theta} \left( \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial\theta} (\Psi \sin\theta) \right) \right] \quad (\text{B.5d})$$

À noter que les potentiels considérés sont ceux du déplacement.

## B.1 Formulaire

### B.1.1 Le cas des liquides

Si les  $G$  sont nuls, on se retrouve avec une situation sans onde de cisaillement ( $\Psi = 0$ ), plus simple. Seules les continuités de  $v_r$  et  $\sigma_{rr}$  interviennent avec

$$v_r = i\omega \frac{\partial\Phi}{\partial r}, \quad (\text{B.6a})$$

$$\sigma_{rr} = -\omega^2 \rho \Phi. \quad (\text{B.6b})$$

#### a) Continuité en $r = R_0$

L'astuce consiste à écrire directement la continuité de  $\Phi' / (\rho\Phi)$  pour se débarrasser du  $A_n$  :

$$\frac{k j'_n(a)}{\rho j_n(a)} = \frac{A'_n k' j'_n(a') + H'_n k' h'_n(a')}{\rho' (A'_n j_n(a') + H'_n h_n(a'))},$$

d'où on déduit la relation simple suivante entre  $H'_n$  et  $A'_n$  :

$$H'_n = -\frac{\frac{k'}{\rho'} j_n(a) j'_n(a') - \frac{k}{\rho} j'_n(a) j_n(a')}{\frac{k'}{\rho'} j_n(a) h'_n(a') - \frac{k}{\rho} j'_n(a) h_n(a')} A'_n. \quad (\text{B.7})$$

Attention à ne pas confondre les primes des fonctions de Bessel, qui désignent les dérivées spatiales, et les primes des paramètres qui indiquent que l'on se trouve dans le milieu intermédiaire.

Les rapports  $H'_n / A'_n$  sont souvent notés  $d_n$ , les coefficients de diffusion pour le diffuseur simple.

---

1. Le 2 en rouge dans la dernière équation manque chez Allegra, mais pas chez Epstein.

**b) Continuité en  $r = R_1$** 

La même astuce nous donne, tous calculs faits

$$H_n'' = -\frac{\frac{k'}{\rho'} G_n j_n(b'') - \frac{k''}{\rho''} j_n'(b'')}{\frac{k'}{\rho'} G_n h_n(b'') - \frac{k''}{\rho''} h_n'(b'')} \quad (\text{B.8a})$$

avec

$$G_n = \frac{j_n'(b') + d_n h_n'(b')}{j_n(b') + d_n h_n(b')}. \quad (\text{B.8b})$$

On retrouve ainsi, sans surprise, la formule (P3.100) du livre de Ping Sheng [87]. On voit que cette formule nous permet d'exprimer les coefficients de diffusion du diffuseur double en fonction des coefficients du diffuseur simple  $d_n$ . Ce résultat est en particulier intéressant pour les calculs de la théorie de CPA (*Coherent Potential Approximation*) [88].

La fonction Matlab `ScatCoef_3Liq`, disponible sur le [site du laboratoire MSC](#), calcule le  $H_n''$  donné par l'équation (B.8a).

**B.1.2 Le cas des solides**

Les expressions deviennent nettement plus compliquées. Mais on peut s'en sortir en notant que

$$\frac{\partial}{\partial \theta} P_n = -P_n' \quad \text{et} \quad \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} (\sin \theta P_n') = n(n+1)P_n$$

**a) Continuité en  $r = R_0$** 

On exprime tout d'abord les continuités de  $v_r$  et  $v_\theta$  :

$$\mathbb{M}_{11}\mathbb{H}' + \mathbb{M}_{12}\mathbb{A}' + \mathbb{M}_{13}\mathbb{A} = 0$$

avec

$$\mathbb{H}' = \begin{bmatrix} H_n' \\ \mathcal{H}_n' \end{bmatrix}, \quad \mathbb{A}' = \begin{bmatrix} A_n' \\ \mathcal{A}_n' \end{bmatrix}, \quad \mathbb{A} = \begin{bmatrix} A_n \\ \mathcal{A}_n \end{bmatrix},$$

et

$$\mathbb{M}_{13} = \begin{bmatrix} -a j_n'(a) & n(n+1)j_n(\alpha) \\ j_n(a) & -j_n(\alpha) - \alpha j_n'(\alpha) \end{bmatrix} \quad (\text{B.9})$$

$$\mathbb{M}_{12} = j \rightarrow -j \quad \text{et} \quad x \rightarrow x' \quad (\text{B.10})$$

$$\mathbb{M}_{11} = j \rightarrow -h \quad \text{et} \quad x \rightarrow x' \quad (\text{B.11})$$

Pour les continuités de  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{r\theta}$ , on a

$$\mathbb{M}_{21}\mathbb{H}' + \mathbb{M}_{22}\mathbb{A}' + \mathbb{M}_{23}\mathbb{A} = 0$$

avec

$$\mathbb{M}_{23} = \begin{bmatrix} [-\omega^2 \rho R_0^2 + 2Ga^2]j_n(a) + 2Ga^2 j_n''(a) & 2Gn(n+1)[j_n(\alpha) - \alpha j_n'(\alpha)] \\ -2G[a j_n'(a) - j_n(a)] & G[\alpha^2 j_n''(\alpha) + (n^2 + n - 2)j_n(\alpha)] \end{bmatrix} \quad (\text{B.12})$$

$$\mathbb{M}_{22} = j \rightarrow -j \quad \text{et} \quad x \rightarrow x' \quad (\text{B.13})$$

$$\mathbb{M}_{21} = j \rightarrow -h \quad \text{et} \quad x \rightarrow x' \quad (\text{B.14})$$



Allegra ne trouve pas le même signe plus en rouge (voir son équation (8f)). Relation utile pour les dérivées secondes :

$$z^2 f_n'' = 2z f_{n+1} - z^2 f_n + n(n-1)f_n$$

(Comme dans les équations (C7) de Epstein, mais avec une correction de signe.)

On met le système sous la forme

$$\mathbb{H}' = \mathbb{M}\mathbb{A}'$$

avec

$$\mathbb{M} = [\mathbb{M}_{13}^{-1}\mathbb{M}_{11} - \mathbb{M}_{23}^{-1}\mathbb{M}_{21}]^{-1} \times [\mathbb{M}_{23}^{-1}\mathbb{M}_{22} - \mathbb{M}_{13}^{-1}\mathbb{M}_{12}]$$

### b) Continuité en $r = R_1$

Avec le même genre de notation, on a le système :

$$\mathbb{N}_{11}\mathbb{H}'' + \mathbb{N}_{12}\mathbb{A}'' + \mathbb{N}_{13}\mathbb{H}' + \mathbb{N}_{14}\mathbb{A}' = 0 \quad \text{pour } v \quad (\text{B.15})$$

$$\mathbb{N}_{21}\mathbb{H}'' + \mathbb{N}_{22}\mathbb{A}'' + \mathbb{N}_{23}\mathbb{H}' + \mathbb{N}_{24}\mathbb{A}' = 0 \quad \text{pour } \sigma \quad (\text{B.16})$$

avec

$$\mathbb{N}_{14} = \mathbb{M}_{13} \quad \text{avec } x \rightarrow x' \quad (\text{B.17})$$

$$\mathbb{N}_{13} = \mathbb{M}_{13} \quad \text{avec } x \rightarrow x' \quad \text{et } j \rightarrow h \quad (\text{B.18})$$

$$\mathbb{N}_{12} = \mathbb{M}_{13} \quad \text{avec } x \rightarrow x'' \quad \text{et } j \rightarrow -j \quad (\text{B.19})$$

$$\mathbb{N}_{11} = \mathbb{M}_{13} \quad \text{avec } x \rightarrow x'' \quad \text{et } j \rightarrow -h \quad (\text{B.20})$$

et les  $a$  et  $\alpha$  deviennent des  $b$  et  $\beta$ . Le même type de relation entre les  $\mathbb{N}_{2i}$  et  $\mathbb{M}_{23}$ , avec en plus  $R_0 \rightarrow R_1$  bien entendu.

On peut de nouveau résoudre sous la forme

$$\mathbb{H}'' = \mathbb{N}\mathbb{A}''$$

avec

$$\mathbb{N} = [\tilde{\mathbb{N}}_{13}^{-1}\mathbb{N}_{11} - \tilde{\mathbb{N}}_{23}^{-1}\mathbb{N}_{21}]^{-1} \times [\tilde{\mathbb{N}}_{23}^{-1}\mathbb{N}_{22} - \tilde{\mathbb{N}}_{13}^{-1}\mathbb{N}_{12}]$$

où

$$\tilde{\mathbb{N}}_{i3} = \mathbb{N}_{i3}\mathbb{M} + \mathbb{N}_{i4}$$

La fonction Matlab `ScatCoef_3Sol`, disponible sur le [site du laboratoire MSC](#), calcule cette matrice  $\mathbb{N}$ .

## B.2 Quelques applications

### B.2.1 Section efficace de diffusion

La diffusion en champ lointain se détermine à partir des coefficients qu'on a calculés. En effet, seuls les termes en  $1/r$  des fonctions de Hankel participent au champ lointain. On en

déduit que

$$\Phi = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) H_n'' h_n(k'' r) P_n(\cos \theta) \rightarrow \frac{f(\theta)}{r} e^{ik'' r} \quad (\text{B.21})$$

$$\text{avec } f(\theta) = \frac{1}{ik''} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) H_n'' P_n(\cos \theta). \quad (\text{B.22})$$

On en déduit des expressions particulièrement simples pour la diffusion vers l'avant et vers l'arrière :

$$f(0) = \frac{1}{ik''} \sum_{n=0}^{\infty} (2n+1) H_n'', \quad (\text{B.23a})$$

$$f(\pi) = \frac{1}{ik''} \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n (2n+1) H_n''. \quad (\text{B.23b})$$

La section efficace de diffusion d'un diffuseur, notée  $\sigma$ , correspond à la puissance que ce diffuseur prélève à l'onde incidente, divisée par l'intensité du champ incident. Il s'agit donc d'une grandeur homogène à une surface et on définit la section efficace géométrique pour un diffuseur sphérique de rayon  $R$  par  $\sigma_{\text{geo}} = 4\pi R^2$ . D'après le théorème optique, la section efficace du diffuseur se détermine à partir de sa fonction de diffusion vers l'avant en champ lointain  $f(0)$  :

$$\sigma = \frac{4\pi \text{Im} f(0)}{k''}. \quad (\text{B.24})$$

En utilisant les formules de la partie précédente, on peut donc prédire la section efficace de n'importe quel type d'inclusion sphérique. La figure [B.2](#) présente la contribution à la section efficace des différents ordres de diffusion, en fonction de la fréquence, pour 3 diffuseurs : une goutte d'eau dans l'air, une bille d'acier dans l'eau, et une bulle d'air dans l'eau.

### B.2.2 Diffusion à basses fréquences

Le principal enseignement de la figure [B.2](#) (autre que la bulle est un diffuseur bien plus fort que n'importe quel autre, sujet sur lequel on revient abondamment dans la partie [1.3](#)) est qu'il nous suffit de connaître les ordres monopolaire et dipolaire de diffusion pour avoir une excellente estimation de la diffusion à basses fréquences d'un diffuseur. Tant que la longueur d'onde dans le milieu hôte reste grande devant le diamètre du diffuseur, on peut considérer que

$$f(0) \simeq \frac{1}{ik''} (H_0'' + 3H_1'') = f_0 + f_1 \quad (\text{B.25})$$

$$f(\pi) \simeq \frac{1}{ik''} (H_0'' - 3H_1'') = f_0 - f_1 \quad (\text{B.26})$$

où on a introduit les fonctions de diffusion monopolaire  $f_0 = H_0''/(ik'')$  et dipolaire  $f_1 = 3H_1''/(ik'')$ .

Regardons le cas d'un diffuseur fluide dans un autre fluide (diffuseur simple). Le module de compression isostatique est alors simplement lié à la compressibilité :  $B = 1/\chi$ .

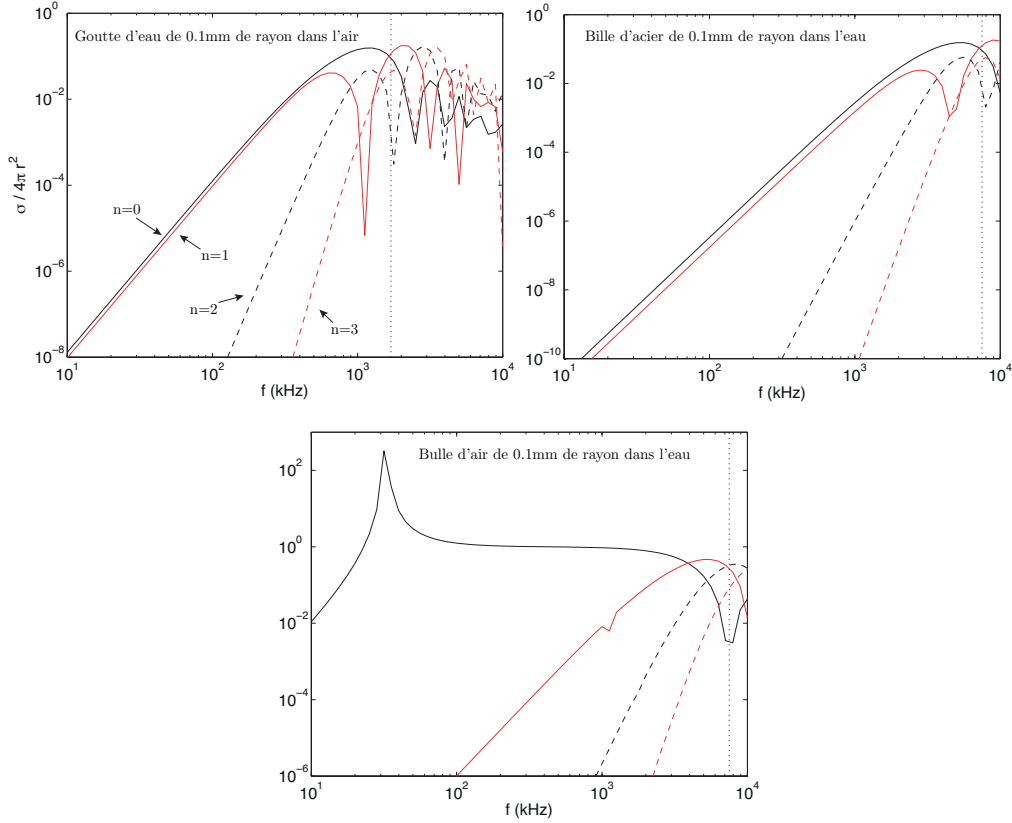


FIGURE B.2 – Pour 3 types de diffuseurs différents, on calcule les contributions des 4 premiers ordres de diffusion à la section efficace  $[4\pi(2n+1)\text{Re}(H_n'')/k'^2]$  pour l'ordre  $n$ , en fonction de la fréquence. Les deux premiers ordres dominent clairement les autres à basses fréquences, c'est à dire quand la longueur d'onde est grande devant le rayon de l'inclusion. Les pointillés verticaux indiquent, dans chaque cas, la fréquence pour laquelle la longueur d'onde dans le milieu extérieur est égale au diamètre de l'inclusion. On retrouve le résultat classique d'une section efficace qui varie comme la puissance 4 de la fréquence (diffusion de Rayleigh). À noter que la bulle possède une section efficace considérablement plus grande que les deux autres exemples. Les scripts Matlab permettant de générer ces 3 exemples sont disponibles sur le [site du laboratoire MSC](#).

L'équation (B.7) nous permet de calculer les limites basses fréquences des fonctions de diffusion monopolaire et dipolaire. En utilisant les développements limités

$$j_0(x) = \frac{\sin x}{x} \sim 1 \quad ; \quad j_0'(x) \sim -\frac{x}{3} \quad (\text{B.27a})$$

$$h_0(x) = \frac{e^{ix}}{ix} \sim -\frac{i}{x} \quad ; \quad h_0'(x) \sim \frac{i}{x^2} \quad (\text{B.27b})$$

et

$$j_1(x) = \frac{\sin x - x \cos x}{x^2} \sim \frac{x}{3} \quad ; \quad j_1'(x) \sim \frac{1}{3} \quad (\text{B.27c})$$

$$h_1(x) = -\frac{e^{ix}}{x} \left[ 1 + \frac{i}{x} \right] \sim -\frac{i}{x^2} \quad ; \quad h_1'(x) \sim \frac{2i}{x^3} \quad (\text{B.27d})$$

on trouve

$$f_0 = R^3 \omega^2 \rho' \frac{\chi - \chi'}{3 - \frac{\chi}{\chi'} (k'R)^2}, \quad (\text{B.28a})$$

$$f_1 = R^3 \omega^2 \chi' \frac{\rho - \rho'}{1 + 2 \frac{\rho}{\rho'}}. \quad (\text{B.28b})$$

On constate que la fonction de diffusion monopolaire est proportionnelle à la différence de compressibilités des deux milieux, tandis que la dipolaire dépend de la différence de masses volumiques. Notons que, dans la fonction de diffusion monopolaire (B.28a), le terme  $(\chi/\chi')(k'R)^2$  au dénominateur est en général petit devant 3 pour le régime basses fréquences qui nous intéresse ici ( $k'R \ll 1$ ), sauf dans le cas particulier d'un rapport de compressibilité  $\chi/\chi'$  très grand (voir B.2.4). Notons également que le dénominateur de (B.28b) se réduit lui aussi à 3 lorsqu'on tient compte de la viscosité des fluides, comme détaillé dans la partie B.2.5.

### B.2.3 Résonances basses fréquences

Pour obtenir les équations (B.28), on a considéré que les longueurs d'ondes dans les deux milieux étaient grandes devant la taille de l'inclusion. Mais on peut s'intéresser au cas où la longueur d'onde dans le milieu hôte est grande ( $k'R \ll 1$ ) tandis que celle dans l'inclusion ne l'est pas forcément ( $kR$  quelconque), ce qui est possible lorsque la vitesse du son dans l'inclusion est notablement inférieure à celle dans le milieu hôte. Cela ouvre la possibilité d'obtenir un milieu effectif avec des diffuseurs résonnants [89].

Réécrivons la fonction de diffusion monopolaire sous la forme

$$f_0 = \frac{1}{k'} \times \frac{\left[1 - \frac{\rho'}{\rho} \mathcal{B}_0(kR)\right] \sin k'R - k'R \cos k'R}{e^{ik'R} \left[\frac{\rho'}{\rho} \mathcal{B}_0(kR) - 1 + ik'R\right]} \quad (\text{B.29})$$

avec  $\mathcal{B}_0(x) = -xj'_0(x)/j_0(x)$ . Les résonances monopolaires de l'inclusion correspondent à des passages par zéro de la partie réelle du dénominateur. On trouve la condition

$$\tan(kR) = \frac{kR}{1 - \rho/\rho'},$$

c'est-à-dire les intersections d'une droite avec la fonction tangente [90]. Outre le cas particulier de la résonance de Minnaert (voir B.2.4), on trouve donc des résonances pour  $kR = \pi/2 + n\pi$  ( $n$  entier quelconque), soit un diamètre d'inclusion correspondant à une demi longueur d'onde.

Pour la fonction de diffusion dipolaire, on obtient

$$f_1 = R \frac{(k'R)^2}{2} \frac{1 + (\rho'/\rho) \mathcal{B}(kR)}{1 - (\rho'/2\rho) \mathcal{B}(kR)} \quad (\text{B.30})$$

avec  $\mathcal{B}_1(x) = -xj'_1(x)/j_1(x)$ . Les résonances dipolaires correspondent à

$$\cotan(kR) = \frac{(kR)^2 + 2(\rho/\rho' - 1)}{2kR(\rho/\rho' - 1)}.$$

Une résolution graphique aboutit à  $kR = n\pi$  : un diamètre d'inclusion égale à une longueur d'onde. Notons qu'il n'y a pas de possibilité de résonance de type Minnaert dans le cas dipolaire.

### B.2.4 Le cas particulier de la bulle

L'analyse de la fonction de diffusion monopolaire (B.29) révèle l'existence d'une résonance particulière si l'inclusion est très compressible ( $\chi/\chi' \gg 1$ ) et de masse volumique très faible ( $\rho/\rho' \ll 1$ ) [90], ce qui correspond à une bulle de gaz dans un liquide. Dans ces conditions, la longueur d'onde dans l'inclusion est grande à résonance : on n'est pas dans la configuration d'une résonance de Mie. En notant que  $\mathcal{B}_0(x) \sim_0 3x^2$ , on peut simplifier (B.29) en

$$f_0 \simeq \frac{1}{k'} \times \frac{\left[1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2}\right] \sin k'R - k'R \cos k'R}{e^{ik'R} \left[\frac{\omega^2}{\omega_0^2} - 1 + ik'R\right]} \quad (\text{B.31})$$

$$\simeq \frac{R}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - 1 - ik'R}, \quad (\text{B.32})$$

avec  $\omega_0^2 = 3/(\rho'\chi R^2)$ . On trouve donc une fonction de diffusion monopolaire de type fonction de réponse d'un oscillateur harmonique, avec une pulsation propre  $\omega_0$  et un taux d'amortissement  $k'R$  qui correspond ici aux pertes radiatives.

Les effets thermiques, visqueux et de tension superficielle modifient la réponse de la bulle. Le terme en  $\omega_0^2$  qui apparaît dans (B.31) passe alors de

$$\frac{3\gamma P_0}{\rho' R^2} \quad \text{à} \quad \frac{3\kappa \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R}\right) - \frac{2\sigma}{R} + 4G'}{\rho' R^2} \quad (\text{B.33})$$

où  $\sigma$  est la tension de surface entre le gaz et le liquide, et  $\kappa$  l'exposant polytropique du gaz, donné par [91]

$$\kappa(\omega, R) = \frac{\gamma}{1 - \frac{3(\gamma-1)}{y^2} [1 - y \coth(y)]}, \quad (\text{B.34})$$

avec  $y = \sqrt{iR^2\omega/D_{\text{th}}}$ ,

où  $D_{\text{th}}$  désigne la diffusivité thermique du gaz et  $\gamma$  son rapport de chaleurs spécifiques. La quantité  $R\sqrt{\omega/D_{\text{th}}}$  dans (B.34) correspond au rapport entre le rayon de la bulle et la longueur typique sur laquelle se font les échanges thermiques, à une fréquence donnée. La figure B.3 trace  $(\kappa-1)/(\gamma-1)$  en fonction de ce rapport de longueur. À basse fréquence, ce rapport tend vers 0 et l'exposant polytropique tend vers 1, comme attendu pour une transformation isotherme. À haute fréquence, au contraire, la longueur de diffusion devient négligeable comparée au rayon de la bulle et  $\kappa$  tend vers  $\gamma$ ; la transformation est adiabatique. Dans ces deux cas extrêmes,  $\kappa$  est purement réel. Pour les fréquences intermédiaires, les changements de volume de la bulle ne sont pas exactement en phase avec la surpression imposée, ce qui se traduit par un  $\kappa$  complexe, dont la partie imaginaire est maximale pour  $R = 4\sqrt{D_{\text{th}}/\omega}$ . Notons que l'amplitude de ce maximum dépend de  $\gamma - 1$ , et qu'on ne prédit pas de pertes thermiques avec un gaz pour lequel  $\gamma = 1$ .

Notons que pour les effets visco-élastiques, le calcul est a priori compliqué puisqu'il faut alors tenir compte du champ de cisaillement, ce qui implique la possibilité de conversions de modes lors de la diffusion par l'inclusion. Cependant, pour des milieux suffisamment "mous",

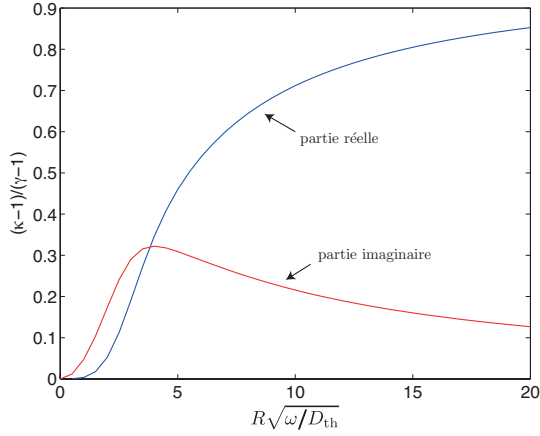


FIGURE B.3 – Parties réelle (bleu) et imaginaire (rouge) de  $(\kappa-1)/(\gamma-1)$  en fonction de  $R\sqrt{\omega/D_{th}}$ , pour  $\gamma = 1.4$ . On constate que la partie imaginaire atteint un maximum d'environ  $0.33(\gamma-1)$  pour  $R = 4\sqrt{\omega/D_{th}}$ . On reste proche du régime isotherme jusqu'à  $R = 2\sqrt{\omega/D_{th}}$  ( $\mathcal{R}(\kappa) \simeq 1 + 0.05(\gamma-1)$ ). Et on commence à s'approcher du régime adiabatique pour des rayons de plus de 10 fois l'épaisseur thermique : pour  $R = 15\sqrt{\omega/D_{th}}$  on atteint  $\mathcal{R}(\kappa) \simeq 1 + 0.8(\gamma-1)$ .

la différence entre les vitesses des ondes longitudinales et des ondes transverses est telle que les deux modes de propagation ne se couplent pas [92, 93]. Les effets visco-élastiques n'interviennent alors que dans (B.33) par le terme  $G'$ , qui se réduit à  $G' = -i\eta\omega$  ( $\eta$  étant la viscosité) pour le cas d'un fluide visqueux, mais peut prendre n'importe quelle forme dans le cas général.

On sépare généralement parties réelle et imaginaire dans (B.33), pour réécrire (B.32) sous la forme

$$f_0 \simeq \frac{R}{\left(\frac{\omega_0}{\omega}\right)^2 - 1 - i(\delta_{rad} + \delta_{vis} + \delta_{the})}, \quad (B.35)$$

avec

$$\omega_0^2 = \frac{3\text{Re}[\kappa] \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R}\right) - \frac{2\sigma}{R} + 4\text{Re}[G']}{\rho' R^2}, \quad (B.36)$$

$$\delta_{rad} = k' R, \quad (B.37)$$

$$\delta_{vis} = \frac{-4\text{Im}[G']}{\rho' R^2 \omega^2}, \quad (B.38)$$

$$\delta_{the} = \frac{-3\text{Im}[\kappa] \left(P_0 + \frac{2\sigma}{R}\right)}{\rho' R^2 \omega^2}. \quad (B.39)$$

On a donc fait apparaître une pulsation propre et trois taux d'amortissement, d'origine radiative, visqueuse et thermique. La pulsation propre ne dépend pas que de la nature du gaz en général : l'élasticité du milieu hôte et la tension de surface peuvent jouer un rôle. En pratique, la tension de surface a un effet négligeable pour des bulles de rayon supérieur à  $10 \mu\text{m}$  (la pression de Laplace est alors faible comparée à la pression atmosphérique), et on néglige cet effet dans le manuscrit.

La figure B.4 permet de comparer l'expression approchée (B.31)<sup>2</sup> à l'expression exacte de la fonction de diffusion vers l'avant donnée par le calcul "solide-solide" (voir B.1.2). Comme le calcul "solide-solide" peut tenir compte de la viscosité, mais pas des effets thermiques et

2. À résonance, (B.32) est une excellente approximation, mais (B.31) permet d'avoir une meilleure expression jusqu'à des fréquences plus grandes. En pratique, on prend donc (B.31) en utilisant l'expression complexe (B.33) pour les termes  $\omega_0^2$ .

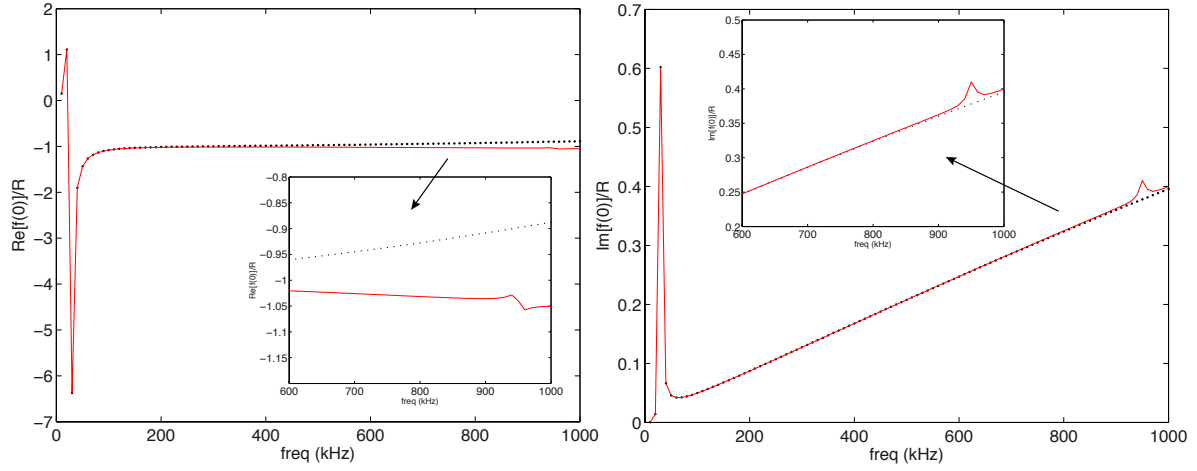


FIGURE B.4 – Parties réelle (gauche) et imaginaire (droite) de la fonction de diffusion vers l’avant (adimensionnée par le rayon  $R$ ) pour une bulle de  $100\ \mu\text{m}$  de rayon dans de l’eau. En rouge, le calcul complet “solide-solide” avec la fonction `ScatCoef_3Sol`. Les points correspondent à la formule approchée (B.31) calculée avec la fonction `ScatBubble`, disponible sur le [site du laboratoire MSC](#).

de la tension de surface, on a considéré le cas particulier  $\gamma = 1$  et  $\sigma = 0$ . On constate que l’approximation d’un résonateur purement monopolaire est très bonne, y compris à des fréquences de l’ordre de 30 fois au-dessus de la fréquence de résonance de la bulle (30 kHz dans cet exemple d’une bulle de  $100\ \mu\text{m}$  de rayon). Cela s’explique par le fait que la diffusion monopolaire à basses fréquences d’une bulle est bien plus forte que les contributions dipolaires et d’ordres supérieurs, comme on peut le constater sur la figure B.2. Même à la première résonance dipolaire (un peu avant 1 MHz dans notre exemple), la diffusion est largement dominée par le terme monopolaire.

Une dernière remarque sur les effets de la forme de la bulle. On montre que c’est le volume de la bulle qui domine sa réponse à basses fréquences, et que sa forme importe donc peu.<sup>3</sup> Toutes les formules s’appliquent alors en prenant comme rayon celui de la sphère de volume équivalent. Cependant, quand les effets élastiques sont importants, il a été montré que la forme de la bulle pouvait avoir une importance [96], mais pour des rapports d’aspect supérieurs à ceux considérés dans ce manuscrit.

### B.2.5 Les limites du calcul fluide-fluide

La formule (B.28b) pour la limite basses fréquences de la fonction de diffusion dipolaire, qui peut s’écrire sous la forme

$$f_1 = R(k'R)^2 \frac{(\rho/\rho') - 1}{1 + 2(\rho/\rho')} \quad (\text{B.40})$$

3. Voir [94] ou l’Annexe B de [95].



est en fait fausse. On s'en aperçoit notamment lorsqu'on utilise la formule de Waterman et Truell pour retrouver la masse volumique effective (voir Annexe C) : on ne retrouve pas la loi de Wood attendue à basses fréquences. Le problème vient de l'hypothèse de fluides parfaits, qui autorise les glissements entre les deux fluides dans les conditions de raccordement. Waterman et Truell montrent que la formule correcte est

$$f_1 = R(k'R)^2 \frac{(\rho/\rho') - 1}{3}. \quad (\text{B.41})$$

On peut le vérifier en faisant le calcul de  $f_1$  pour des matériaux solides et en prenant un module de cisaillement purement imaginaire :  $G' = -i\omega\eta$ ,  $\eta$  étant la viscosité du milieu environnant. Comme le montre la figure B.5, le paramètre important est le rapport entre la longueur visqueuse  $l_{\text{vis}} = \sqrt{\eta/(\rho\omega)}$  et le rayon de l'inclusion  $R$ . Quand ce rapport est petit, on trouve effectivement la formule (B.40), qui néglige la viscosité. Quand il est plus grand que 1, c'est la formule (B.41) qu'il faut appliquer<sup>4</sup>. On en déduit que c'est bien la formule (B.41) qu'il convient de considérer pour le comportement basses fréquences d'un diffuseur puisque, quelle que soit la viscosité du milieu, le rapport  $l_{\text{vis}}/R$  tend vers l'infini quand la fréquence tend vers 0. C'est un cas intéressant d'une situation dans laquelle on ne retrouve pas le résultat du calcul avec fluide parfait quand on prend la limite "viscosité nulle" du calcul avec fluide visqueux.

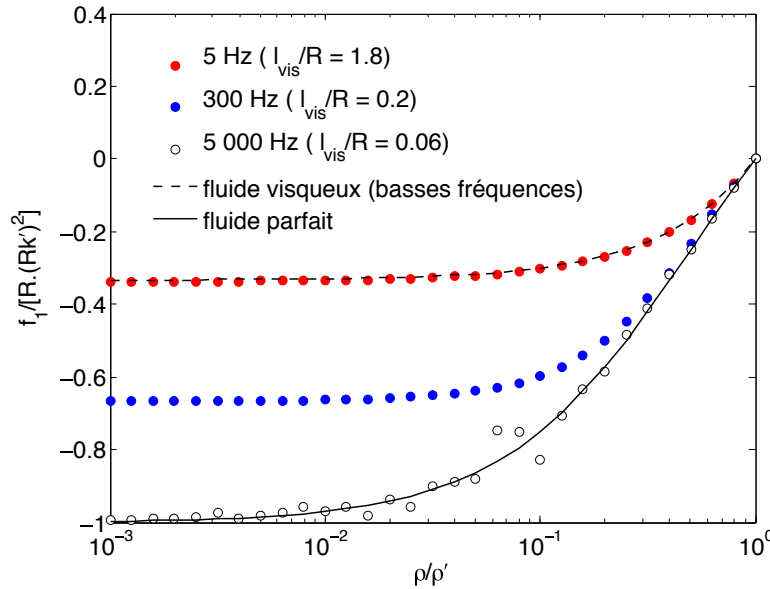


FIGURE B.5 – Fonction de diffusion dipolaire pour une inclusion sphérique de rayon  $R = 100 \mu\text{m}$  dans de l'eau ( $\eta = 10^{-3} \text{ Pa.s}$ ) en fonction de sa masse volumique. Les points sont issus du calcul complet pour des solides (voir B.1.2), à différentes fréquences. La courbe en trait continu correspond à la formule (B.40); celle hachurée à (B.41).

4. Le critère  $l_{\text{vis}}/R > 1$  pour que la formule (B.41) s'applique paraît suffisant sur la figure B.5, pour des  $\rho/\rho' < 1$ . Mais notons que si on considère des inclusions plus denses que le milieu hôte, il faut des rapports plus grands (donc des fréquences plus basses) pour avoir un bon accord.

## Annexe C

# Waterman et Truell

### C.1 Résultat principal

Dans leur article de 1961 [15], Waterman et Truell établissent la formule suivante (équation (3.25) dans leur papier) :

$$\left(\frac{k}{k_0}\right)^2 = \left[1 + \frac{2\pi n f(0)}{k_0^2}\right]^2 - \left[\frac{2\pi n f(\pi)}{k_0^2}\right]^2, \quad (\text{C.1})$$

avec le commentaire

*This is the central result of the computation: The behavior of the scattering medium, characterized by the complex propagation constant  $k$ , may be specified explicitly in terms of the number of scatterers per unit volume and the far field amplitude  $f(\theta)$  obtained for a single scatterer.*

Dans (C.1),  $k$  est le nombre d'onde effectif,  $k_0$  celui de la propagation dans le milieu hôte pur,  $n$  le nombre de diffuseurs par unité de volume et  $f(0)$ ,  $f(\pi)$  la diffusion en champ lointain par un diffuseur unique, vers l'avant et vers l'arrière.

Cette équation est *a priori* valable pour tout  $n$ , c'est-à-dire quelle que soit la concentration en diffuseurs, dans le cadre d'une hypothèse d'un "gaz parfait" de diffuseurs ponctuels. Elle redonne bien l'ISA quand on en fait le développement au premier ordre en  $n$ .

Pour des diffuseurs sub-longueur d'onde, on peut se limiter aux termes monopolaire et dipolaire dans la réponse du diffuseur, notés respectivement  $f_0$  et  $f_1$ , et on montre que  $f(0) = f_0 + f_1$  et  $f(\pi) = f_0 - f_1$  (voir partie B.2.2 de l'annexe B). L'équation (C.1) devient alors

$$\left(\frac{k}{k_0}\right)^2 = (1 + 4\pi n f_0/k_0^2)(1 + 4\pi n f_1/k_0^2), \quad (\text{C.2})$$

$$\text{soit } \frac{\chi_{\text{eff}}}{\chi_0} \times \frac{\rho_{\text{eff}}}{\rho_0} = (1 + 4\pi n f_0/k_0^2) \times (1 + 4\pi n f_1/k_0^2), \quad (\text{C.3})$$

À basses fréquences, les fonctions de diffusion pour une sphère de rayon  $R$ , de compressibilité et masse volumique  $\chi$  et  $\rho$  dans un milieu de compressibilité et masse volumique  $\chi_0$  et  $\rho_0$  sont

données par (voir partie B.2.2) :

$$f_0 = R^3 k_0^2 \times \frac{\chi/\chi_0 - 1}{3}, \quad (\text{C.4a})$$

$$f_1 = R^3 k_0^2 \times \frac{\rho/\rho_0 - 1}{1 + 2\frac{\rho}{\rho_0}}. \quad (\text{C.4b})$$

En injectant (C.4) dans (C.3), on aboutit à

$$\chi_{\text{eff}} = \chi_0 + \Phi(\chi - \chi_0), \quad (\text{C.5a})$$

$$\rho_{\text{eff}} = \rho_0 + \Phi \frac{\rho - \rho_0}{1/3 + 2\rho/(3\rho_0)}, \quad (\text{C.5b})$$

avec  $\Phi = 4\pi n R^3/3$  la fraction du volume occupé par les diffuseurs. On retrouve donc bien la formule de Wood (voir 1.2.1) pour la compressibilité. Mais la formule est différente pour la masse volumique effective, et on ne retrouve Wood que pour des faibles contrastes de densité ( $\rho \simeq \rho_0$ ). Ce désaccord avec Wood provient de l'hypothèse de fluide parfait que l'on fait pour établir (C.4b), qui autorise un mouvement relatif important entre le diffuseur et le milieu hôte puisqu'aucune viscosité ne vient s'y opposer. On peut d'ailleurs retrouver ce résultat à partir du mouvement d'une sphère de masse volumique  $\rho$  entraînée dans un fluide parfait de masse volumique  $\rho_0$  animé d'un mouvement vibratoire de vitesse  $v$ . On montre<sup>1</sup> que la vitesse  $u$  de la sphère s'écrit

$$u = v \times \frac{3\rho_0}{\rho_0 + 2\rho}. \quad (\text{C.6})$$

Pour une tranche de liquide contenant une fraction volumique  $\Phi$  de sphères, un bilan du déplacement conduit donc à

$$\rho_{\text{eff}} = \rho_0 + \Phi(\rho - \rho_0) \frac{u}{v}, \quad (\text{C.7})$$

ce qui redonne bien (C.5b). Comme détaillé dans la partie B.2.5, quand on tient compte de la viscosité des fluides, la limite basses fréquences de la fonction de diffusion dipolaire change, et on retrouve effectivement la formule de Wood à basses fréquences. Cette discussion du rôle de la viscosité dans le mouvement du diffuseur est présente dans l'article de Waterman et Truell. Pourtant, on trouve dans la littérature, y compris récente, des formules de masses volumiques effectives du genre de (C.5b), sans aucune discussion sur leur limite de validité.

## C.2 Waterman et Truell pour les nuls

Si le résultat principal de Waterman et Truell a une interprétation très simple, les calculs de l'article ne sont pas très faciles à suivre. On propose ici une version plus simple, dans l'esprit du chapitre 1 (voir 1.2.2). Il s'agit de tenir compte non seulement de la diffusion monopolaire des inclusions, mais également de leur réponse dipolaire. Pour simplifier encore le calcul, on ne va pas considérer d'interface et regarder ce qu'il se passe pour un milieu infini peuplé de diffuseurs identiques (voir figure C.1 de gauche).

---

1. C'est par exemple un exercice du Landau de mécanique des fluides [97], dans le chapitre sur les fluides parfaits. Merci à Benjamin Dollet pour cette référence.

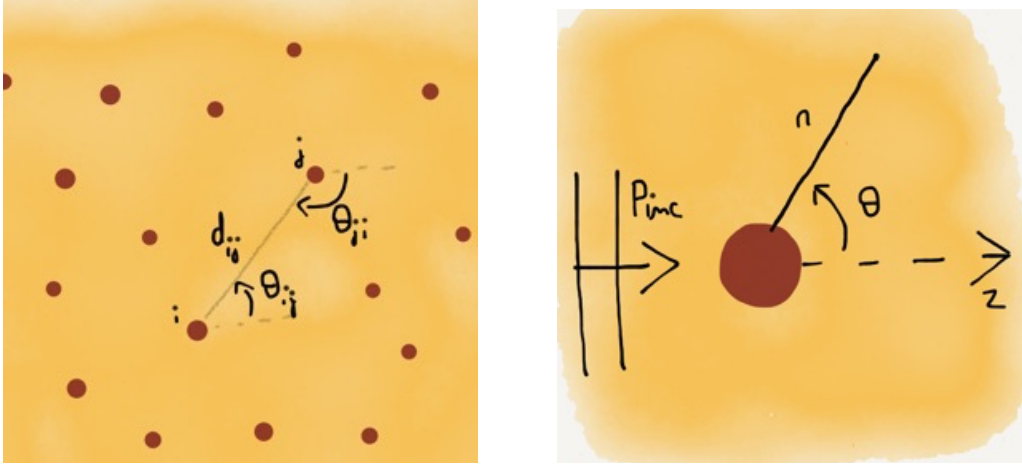


FIGURE C.1 – Gauche : deux diffuseurs  $i$  et  $j$  parmi un milieu infini de diffuseurs. Droite : une onde plane dans la direction  $z$  excite une inclusion qui diffuse un champ, repéré en coordonnées sphériques (la symétrie du problème fait que l'angle  $\varphi$  n'est pas nécessaire).

Commençons par établir une formule simple pour la diffusion par une inclusion sub-longueur d'onde. Pour une onde plane arrivant sur un diffuseur (voir figure C.1 de droite), on a recours à la base des ondes sphériques :

$$p_{\text{inc}} = e^{ik_0 z} = \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) j_n(k_0 r) P_n(\cos \theta), \quad (\text{C.8})$$

où les  $j_n$  sont les fonctions de Bessel sphérique et  $P_n$  les polynômes de Legendre. On cherche le champ engendré par le diffuseur sous la forme

$$p(r) = p \sum_{n=0}^{\infty} i^n (2n+1) d_n h_n(k_0 r) P_n(\cos \theta), \quad (\text{C.9})$$

avec  $h_n$  les fonctions de Hankel sphériques et  $d_n$  les coefficients de diffusion. À basses fréquences, c'est à dire quand la longueur d'onde est grande devant la taille de l'inclusion, on peut se limiter aux deux premiers termes des sommes :

$$e^{ik_0 z} = 1 + ik_0 z \quad (\text{C.10})$$

$$p(r) = d_0 h_0(k_0 r) + 3id_1 h_1(k_0 r) \cos \theta. \quad (\text{C.11})$$

En identifiant le  $ik_0$  comme le gradient local du champ  $\partial p_{\text{inc}}/\partial z$ , on généralise (C.11) en

$$p(r) = p_{\text{inc}} d_0 h_0(k_0 r) + \frac{1}{ik_0} \frac{\partial p_{\text{inc}}}{\partial z} \times 3id_1 h_1(k_0 r) \cos \theta, \quad (\text{C.12})$$

soit, en utilisant les fonctions de diffusion ( $f_0 = d_0/(ik_0)$  et  $f_1 = 3d_1/(ik_0)$ ) et en explicitant les fonctions de Hankel sphériques (voir (B.27)), un champ diffusé en

$$p(r, \theta) = p_{\text{inc}} f_0 \frac{e^{ik_0 r}}{r} - ip'_{\text{inc}} f_1 \frac{e^{ik_0 r}}{k_0 r} \left( 1 + \frac{i}{k_0 r} \right) \cos \theta. \quad (\text{C.13})$$

On trouve donc que la composante monopolaire du champ diffusé dépend de l'amplitude du champ incident, tandis que la composante dipolaire dépend du gradient du champ incident.

De retour au cas du milieu infini de diffuseurs (figure C.1 de gauche), on calcule le champ total au niveau du diffuseur  $i$  :

$$p_i = \sum_{j \neq i} p_j f_0 \frac{e^{ik_0 d_{ij}}}{d_{ij}} - i p'_j f_1 \frac{e^{ik_0 d_{ij}}}{k_0 d_{ij}} \left( 1 + \frac{i}{k_0 d_{ij}} \right) \cos \theta_{ji}, \quad (\text{C.14})$$

avec  $d_{ij}$  la distance entre les diffuseurs  $i$  et  $j$ , et  $\theta_{ji}$  l'angle sous lequel la bulle  $j$  voit la bulle  $i$ . Comme indiqué sur la figure C.1, on a la relation  $\theta_{ji} = \theta_{ij} - \pi$ , soit  $\cos \theta_{ji} = -\cos \theta_{ij}$ . On cherche une solution de la forme  $p_i = p \times \exp(ikz_i)$  avec un nombre d'onde effectif  $k$  à déterminer. Tous les diffuseurs étant identiques, on peut, sans perte de généralité, en choisir un comme étant à l'origine de notre système de coordonnées. On a donc l'équation :

$$1 = \sum_{j \neq 0} e^{ikz_j} \times \frac{e^{ik_0 r_j}}{r_j} \left[ f_0 - \frac{k}{k_0} f_1 \left( 1 + \frac{i}{k_0 r_j} \right) \cos \theta_j \right], \quad (\text{C.15})$$

où on a considéré que  $p'_j = ikp_j$ , et où  $\theta_j = \theta_{0j}$  est l'angle sous lequel le diffuseur central voit le diffuseur  $j$ . À la limite continue avec  $n$  diffuseurs par unité de volume, cela devient

$$1 = \int n d^3 r e^{ikr \cos \theta} \times \frac{e^{ik_0 r}}{r} \left[ f_0 - \frac{k}{k_0} f_1 \left( 1 + \frac{i}{k_0 r} \right) \cos \theta \right]. \quad (\text{C.16})$$

On va prendre 0 pour la borne d'intégration inférieure, ce qui revient à considérer un gaz parfait de diffuseurs ponctuels.

Pour les intégrales, on a besoin de calculer

$$I_n = \int_0^\pi 2\pi \sin \theta d\theta (\cos \theta)^n e^{ikr \cos \theta}. \quad (\text{C.17})$$

Avec un petit changement de variable et une intégration par partie, on trouve une relation de récurrence ; et les deux premiers  $I_n$  donnent :

$$I_0 = 4\pi \frac{\sin kr}{kr} \quad (\text{C.18})$$

$$I_1 = \frac{4\pi}{ikr} \left( \cos kr - \frac{\sin kr}{kr} \right) \quad (\text{C.19})$$

Donc l'équation (C.16) devient

$$1 = \int 4\pi n dr (f_0/k) [\sin kr] e^{ik_0 r} - i \int 4\pi n dr (f_1/k_0) \left[ \frac{kr \cos kr - \sin kr}{kr} \right] e^{ik_0 r} \left( 1 + \frac{i}{k_0 r} \right) \quad (\text{C.20})$$

En prenant les développements en série des crochets :

$$\sin kr = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(2n+1)!} (kr)^{2n+1} \quad (\text{C.21})$$

$$\frac{kr \cos kr - \sin kr}{kr} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n 2n}{(2n+1)!} (kr)^{2n} \quad (\text{C.22})$$

et en utilisant la relation

$$Y_n = \int_0^\infty r^n e^{ikr} dr = i^{n+1} n! \frac{1}{k^{n+1}} \quad (\text{C.23})$$

on tombe sur

$$1 = \frac{4\pi n f_0}{k^2 - k_0^2} + \frac{4\pi n f_1}{k^2 - k_0^2} \left( \frac{k}{k_0} \right)^2 \quad (\text{C.24})$$

soit

$$\frac{k^2}{k_0^2} = \left( 1 + \frac{4\pi n f_0}{k_0^2} \right) \left( 1 - \frac{4\pi n f_1}{k_0^2} \right)^{-1} \quad (\text{C.25})$$

Ce n'est donc pas tout à fait la formule de Waterman et Truell puisqu'on ne retrouve (C.3) qu'au prix d'un développement limité, c'est à dire pour de faibles fractions volumiques ( $4\pi n f_1/k_0^2 \ll 1$ ).

Le problème du calcul précédent provient de l'intégration en 0 : comme la diffusion dipolaire comprend un terme en  $1/r^2$ , il convient de s'approcher de 0 avec prudence. On doit faire le calcul en excluant un petit volume, puis faire tendre ce volume vers 0. Comme discuté dans l'article de Waterman et Truell, le choix de la forme du volume à exclure n'est pas trivial et on obtient des résultats différents selon qu'on exclut une boule de rayon  $\epsilon$  autour du point central, un cylindre de rayon  $\epsilon$  autour de l'axe des  $z$ , ou une couche d'épaisseur  $\epsilon$  perpendiculaire à l'axe de  $z$ . Un argument physique (parfois contesté, y compris par les auteurs eux-mêmes [98, 99]) est qu'il faut que le résultat donne la même chose quand on calcule l'intégrale du gradient du champ et quand on calcule le gradient de l'intégrale du champ. On montre que c'est la couche d'épaisseur  $\epsilon$  qu'il faut prendre.

Reprenons le calcul du champ total résultant de la contribution de tous les diffuseurs. Plutôt que de calculer le champ total  $p_{\text{tot}}$  au point particulier (et pathologique) 0, regardons ce qu'il vaut en un point  $z$  proche de l'origine (voir figure C.2). On va toujours chercher une solution de la forme  $p_i = p \times \exp(ikz_i)$ , c'est à dire supposer que chaque diffuseur  $i$  voit une onde plane d'amplitude  $p$ . Par contre, on va écrire que le gradient local que ressent chaque diffuseur est sous la forme générale  $p' \times \exp(ikz_i)$ , sans supposer comme avant que  $p' = ikp$ .

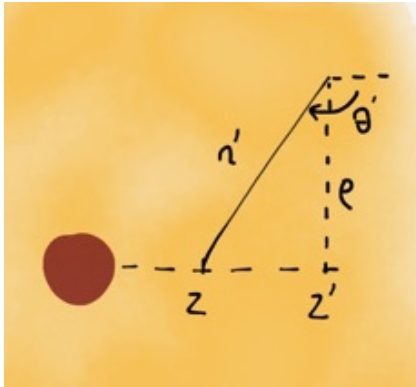


FIGURE C.2 – On s'intéresse au champ total en un point  $z$  proche du diffuseur central. Les positions dans la “mer de diffuseurs” sont repérées par les coordonnées cylindriques  $z'$ ,  $\rho$ . La distance est donc  $r' = \sqrt{\rho^2 + (z' - z)^2}$  et l'angle vérifie  $\cos \theta' = (z - z')/r'$ .

Le champ total  $p_{\text{tot}}(z)$  peut se décomposer en une contribution monopolaire  $p_{\text{tot}}^0(z)$  et une

dipolaire  $p_{\text{tot}}^1(z)$ , qui sont données chacune par (voir les notations de la figure C.2)

$$p_{\text{tot}}^0(z) = pf_0n \int_{-\infty}^{+\infty} dz' \int_0^{\infty} 2\pi\rho d\rho e^{ikz'} \frac{e^{ik_0r'}}{r'} - \Delta^0(z), \quad (\text{C.26})$$

$$p_{\text{tot}}^1(z) = ip'f_1n \int_{-\infty}^{+\infty} dz' \int_0^{\infty} 2\pi\rho d\rho e^{ikz'} \frac{e^{ik_0r'}}{k_0r'} \left(1 + \frac{i}{k_0r'}\right) \frac{z' - z}{r'} - \Delta^1(z), \quad (\text{C.27})$$

avec  $r' = \sqrt{\rho^2 + (z' - z)^2}$ , et où les  $\Delta(z)$  permettent de retirer la tranche autour de l'origine :

$$\Delta^0(z) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left[ pf_0n \int_{-\epsilon}^{+\epsilon} dz' \int_0^{\infty} 2\pi\rho d\rho e^{ikz'} \frac{e^{ik_0r'}}{r'} \right], \quad (\text{C.28})$$

$$\Delta^1(z) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left[ ip'f_1n \int_{-\epsilon}^{+\epsilon} dz' \int_0^{\infty} 2\pi\rho d\rho e^{ikz'} \frac{e^{ik_0r'}}{k_0r'} \left(1 + \frac{i}{k_0r'}\right) \frac{z' - z}{r'} \right]. \quad (\text{C.29})$$

Tous calculs faits,<sup>2</sup> on trouve un champ total

$$p_{\text{tot}}(z) = 4\pi n \frac{e^{ikz}}{k^2 - k_0^2} \left[ pf_0 - ip'f_1 \frac{k}{k_0^2} \right] - [\Delta^0(z) + \Delta^1(z)], \quad (\text{C.30})$$

avec

$$\Delta^0(z) = 2\pi n p f_0 \frac{1}{k_0} \left[ \frac{2k_0 e^{ikz}}{k^2 - k_0^2} - \left( \frac{e^{ik_0z}}{k - k_0} - \frac{e^{-ik_0z}}{k + k_0} \right) \right], \quad (\text{C.31})$$

$$\Delta^1(z) = -i2\pi n p' f_1 \frac{1}{k_0^2} \left[ \frac{2k e^{ikz}}{k^2 - k_0^2} - \left( \frac{e^{ik_0z}}{k - k_0} + \frac{e^{-ik_0z}}{k + k_0} \right) \right]. \quad (\text{C.32})$$

Attention que ces expressions n'ont un sens qu'en  $z = 0$  puisqu'elles ont été calculées en supposant que la position  $z$  était dans la tranche d'épaisseur  $2\epsilon$ , alors même que la limite  $\epsilon \rightarrow 0$  a été prise. Mais cela permet de calculer le gradient selon  $z$  à l'origine. On obtient alors les contributions des  $\Delta$  et de leur gradient en  $z = 0$  :

$$\Delta^0(z = 0) = 0 \quad ; \quad \frac{\partial \Delta^0}{\partial z}(z = 0) = 0 \quad (\text{C.33})$$

$$\Delta^1(z = 0) = 0 \quad ; \quad \frac{\partial \Delta^1}{\partial z}(z = 0) = \frac{4\pi n}{k_0^2} p' f_1. \quad (\text{C.34})$$

Et on arrive finalement au résultat suivant, par définition de  $p$  et  $p'$ ,

$$p = \frac{4\pi n}{k^2 - k_0^2} \left[ pf_0 - ip'f_1 \frac{k}{k_0^2} \right], \quad (\text{C.35})$$

$$p' = ikp - \frac{4\pi n}{k_0^2} p' f_1, \quad (\text{C.36})$$

ce qui donne une version plus juste de (C.24) :

$$1 = \frac{4\pi n}{k^2 - k_0^2} \left[ f_0 + \frac{k^2 f_1}{k_0^2 + 4\pi n f_1} \right], \quad (\text{C.37})$$

équation qui est elle bien en accord avec Waterman et Truell.

---

2. Un résultat utile, qui se démontre en passant par les séries entières, est  $\int dx [1 + i/(kx)] e^{ikx}/x = e^{ikx}/(ikx)$ .





# Bibliographie

- [1] Crawford, F. S. The hot chocolate effect. *American Journal of Physics* **50**(5), 398–404 (1982).
- [2] Minnaert, M. On musical air-bubbles and the sounds of running water. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **16**(104), 235–248 (1933).
- [3] Dukhin, A. S. and Goetz, P. J. Acoustic and electroacoustic spectroscopy for characterizing concentrated dispersions and emulsions. *Advances in Colloid and Interface Science* **92**(1), 73–132 (2001).
- [4] Cents, A., Brilman, D., Versteeg, G., Wijnstra, P., and Regtien, P. Measuring bubble, drop and particle sizes in multiphase systems with ultrasound. *AIChE journal* **50**(11), 2750–2762 (2004).
- [5] Schurig, D., Mock, J., Justice, B., Cummer, S. A., Pendry, J., Starr, A., and Smith, D. Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies. *Science* **314**(5801), 977–980 (2006).
- [6] Veselago, V. G. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of  $\epsilon$  and  $\mu$ . *Physics-Uspekhi* **10**(4), 509–514 (1968).
- [7] Pendry, J. B. Negative refraction makes a perfect lens. *Physical review letters* **85**(18), 3966 (2000).
- [8] Brunet, T., Merlin, A., Mascaro, B., Zimny, K., Leng, J., Poncelet, O., Aristégui, C., and Mondain-Monval, O. Soft 3d acoustic metamaterial with negative index. *Nature materials* **14**(4), 384–388 (2015).
- [9] Baudoin, M., Thomas, J.-L., Coulouvrat, F., and Lhuillier, D. An extended coupled phase theory for the sound propagation in polydisperse concentrated suspensions of rigid particles. *The Journal of the Acoustical Society of America* **121**(6), 3386–3397 (2007).
- [10] Valier-Brasier, T., Conoir, J.-M., Coulouvrat, F., and Thomas, J.-L. Sound propagation in dilute suspensions of spheres : Analytical comparison between coupled phase model and multiple scattering theory. *The Journal of the Acoustical Society of America* **138**(4), 2598–2612 (2015).
- [11] Derode, A., Mamou, V., and Tourin, A. Influence of correlations between scatterers on the attenuation of the coherent wave in a random medium. *Physical Review E* **74**(3), 036606 (2006).

- [12] Foldy, L. L. The multiple scattering of waves. *Physical Review* **67**, 107–119 (1945).
- [13] Angel, Y. C. and Aristégui, C. Analysis of sound propagation in a fluid through a screen of scatterers. *The Journal of the Acoustical Society of America* **118**(1), 72–82 (2005).
- [14] Aristégui, C. and Angel, Y. C. Effective mass density and stiffness derived from p-wave multiple scattering. *Wave Motion* **44**(3), 153–164 (2007).
- [15] Waterman, P. C. and Truell, R. Multiple scattering of waves. *Journal of Mathematical Physics* **2**(4), 512–537 (1961).
- [16] Leroy, V., Devaud, M., and Bacri, J.-C. The air bubble : Experiments on an unusual harmonic oscillator. *American Journal of Physics* **70**(10), 1012–1019 (2002).
- [17] Ando, K., Colonius, T., and Brennen, C. E. Improvement of acoustic theory of ultrasonic waves in dilute bubbly liquids. *The Journal of the Acoustical Society of America* **126**(3), EL69–EL74 (2009).
- [18] Commander, K. W. and Prosperetti, A. Linear pressure waves in bubbly liquids : Comparison between theory and experiments. *The Journal of the Acoustical Society of America* **85**(2), 732–746 (1989).
- [19] Feuillade, C. The attenuation and dispersion of sound in water containing multiply interacting air bubbles. *The Journal of the Acoustical Society of America* **99**(6), 3412–3430 (1996).
- [20] Ye, Z. and Ding, L. Acoustic dispersion and attenuation relations in bubbly mixture. *The Journal of the Acoustical Society of America* **98**(3), 1629–1636 (1995).
- [21] Henyey, F. S. Corrections to foldy’s effective medium theory for propagation in bubble clouds and other collections of very small scatterers. *The Journal of the Acoustical Society of America* **105**(4), 2149–2154 (1999).
- [22] Kargl, S. G. Effective medium approach to linear acoustics in bubbly liquids. *The Journal of the Acoustical Society of America* **111**(1), 168–173 (2002).
- [23] Ye, Z. Comments on “the attenuation and dispersion of sound in water containing multiply interacting air bubbles”[j. acoust. soc. am. 99, 3412–3430 (1996)]. *The Journal of the Acoustical Society of America* **102**(2), 1239–1241 (1997).
- [24] Feuillade, C. Response to “comments on ‘the attenuation and dispersion of sound in water containing multiply interacting air bubbles’”[J. Acoust Soc. Am. 102, 1239–1241 (1997)]. *The Journal of the Acoustical Society of America* **102**(2), 1242–1245 (1997).
- [25] Feuillade, C. Comment on “corrections to foldy’s effective medium theory for propagation in bubble clouds and other collections of very small scatterers”[J. Acoust. Soc. Am. 105, 2149–2154 (1999)]. *The Journal of the Acoustical Society of America* **111**(4), 1552–1555 (2002).
- [26] Henyey, F. S. Reply to “comment on ‘corrections to foldy’s effective medium theory for propagation in bubble clouds and other collections of very small scatterers’”[j. acoust. soc. am. 111, 1552–1555 (2002)]. *The Journal of the Acoustical Society of America* **111**(4), 1556–1559 (2002).

- [27] Silberman, E. Sound velocity and attenuation in bubbly mixtures measured in standing wave tubes. *The journal of the Acoustical Society of America* **29**(8), 925–933 (1957).
- [28] Leroy, V., Strybulevych, A., Page, J. H., and Scanlon, M. G. Sound velocity and attenuation in bubbly gels measured by transmission experiments. *The Journal of the Acoustical Society of America* **123**(4), 1931–1940 (2008).
- [29] Campbell, G., Rielly, C., Fryer, P., and Sadd, P. Aeration of bread dough during mixing : effect of mixing dough at reduced pressure. *Cereal Foods World* **43**(3), 163–167 (1998).
- [30] Strybulevych, A., Leroy, V., Scanlon, M., and Page, J. Characterizing a model food gel containing bubbles and solid inclusions using ultrasound. *Soft Matter* **3**(11), 1388–1394 (2007).
- [31] Leroy, V., Fan, Y., Strybulevych, A., Bellido, G., Page, J., and Scanlon, M. Investigating the bubble size distribution in dough using ultrasound. *Bubbles in food* **2**, 51–60 (2008).
- [32] Keller, J. Stochastic equations and wave propagation in random media. *Proc. symp. Appl. Math.* **16** (1964).
- [33] Bellido, G. G., Scanlon, M. G., Page, J. H., and Hallgrimsson, B. The bubble size distribution in wheat flour dough. *Food Research International* **39**(10), 1058–1066 (2006).
- [34] Leroy, V., Pitura, K. M., Scanlon, M. G., and Page, J. H. The complex shear modulus of dough over a wide frequency range. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* **165**(9), 475–478 (2010).
- [35] Leroy, V., Strybulevych, A., Page, J. H., and Scanlon, M. G. Influence of positional correlations on the propagation of waves in a complex medium with polydisperse resonant scatterers. *Physical Review E* **83**(4), 046605 (2011).
- [36] Cartellier, A. and Rivière, N. Bubble-induced agitation and microstructure in uniform bubbly flows at small to moderate particle reynolds numbers. *Physics of Fluids (1994-present)* **13**(8), 2165–2181 (2001).
- [37] Fuster, D., Conoir, J., and Colonius, T. Effect of direct bubble-bubble interactions on linear-wave propagation in bubbly liquids. *Physical Review E* **90**(6), 063010 (2014).
- [38] Wilson, P. S., Roy, R. A., and Carey, W. M. Phase speed and attenuation in bubbly liquids inferred from impedance measurements near the individual bubble resonance frequency. *The Journal of the Acoustical Society of America* **117**(4), 1895–1910 (2005).
- [39] Van Der Biest, F. *Diffusion multiple et renversement du temps ultrasonore dans des milieux périodiques et désordonnés*. PhD thesis, Université Paris-Diderot-Paris VII, (2005).
- [40] Leroy, V., Strybulevych, A., Scanlon, M., and Page, J. Transmission of ultrasound through a single layer of bubbles. *The European Physical Journal E* **29**(1), 123–130 (2009).
- [41] Bretagne, A. *Manipulation d’ondes ultrasonores en milieux complexes : filtrage, guidage et focalisation*. PhD thesis, Université Paris-Diderot-Paris VII, (2011).
- [42] Kafesaki, M., Penciu, R., and Economou, E. Air bubbles in water : a strongly multiple scattering medium for acoustic waves. *Physical review letters* **84**(26), 6050 (2000).

- [43] Bretagne, A., Tourin, A., and Leroy, V. Enhanced and reduced transmission of acoustic waves with bubble meta-screens. *Applied Physics Letters* **99**(22), 221906 (2011).
- [44] Leroy, V., Strybulevych, A., Lanoy, M., Lemoult, F., Tourin, A., and Page, J. H. Super-absorption of acoustic waves with bubble metascreens. *Physical Review B* **91**(2), 020301 (2015).
- [45] Bliokh, K. Y., Bliokh, Y. P., Freilikher, V., Savel'ev, S., and Nori, F. Colloquium : Unusual resonators : Plasmonics, metamaterials, and random media. *Reviews of Modern Physics* **80**(4), 1201 (2008).
- [46] Cantat, I., Cohen-Addad, S., Elias, F., Graner, F., Höhler, R., Pitois, O., Rouyer, F., and Saint-Jalmes, A. *Les mousses : structure et dynamique*. Belin, (2010).
- [47] Gardiner, B., Dlugogorski, B., Jameson, G., and Chhabra, R. Yield stress measurements of aqueous foams in the dry limit. *Journal of Rheology (1978-present)* **42**(6), 1437–1450 (1998).
- [48] Zamashchikov, V., Kakutkina, N., and WOOD, J. Experimental investigations of the acoustical properties of foams. *Soviet physics. Acoustics* **37**(3), 248–250 (1991).
- [49] Orenbakh, Z., Shushkov, G., and WOOD, J. Acoustical characteristics of water-air foams. *Acoustical physics* **39**(1), 63–66 (1993).
- [50] Shreiber, I., Ben-Dor, G., Britan, A., and Feklistov, V. Foam self-clarification phenomenon : An experimental investigation. *Shock Waves* **15**(3-4), 199–204 (2006).
- [51] Mujica, N. and Fauve, S. Sound velocity and absorption in a coarsening foam. *Physical Review E* **66**(2), 021404 (2002).
- [52] Kann, K. Sound waves in foams. *Colloids and surfaces a : physicochemical and engineering aspects* **263**(1), 315–319 (2005).
- [53] Monloubou, M., Saint-Jalmes, A., Dollet, B., and Cantat, I. Influence of bubble size and thermal dissipation on compressive wave attenuation in liquid foams. *EPL (Europhysics Letters)* **112**(3), 34001 (2015).
- [54] Orenbakh, Z., Shushkov, G., and WOOD, J. Velocity and dissipation of sound in gas-liquid foams. *Soviet physics. Acoustics* **38**(2) (1992).
- [55] Moxon, N., Torrance, A., and Richardson, S. The attenuation of acoustic signals by aqueous and particulate foams. *Applied Acoustics* **24**(3), 193–209 (1988).
- [56] Shushkov, G. and Feklistov, V. Acoustic properties of gas-liquid foams with solid particles. *Acoustical Physics* **41**, 283–285 (1995).
- [57] Ding, J., Tsaur, F. W., Lips, A., and Akay, A. Acoustical observation of bubble oscillations induced by bubble popping. *Physical Review E* **75**(4), 041601 (2007).
- [58] Blanc, É., Ollivier, F., Antkowiak, A., and Wunenburger, R. Comment on “acoustical observation of bubble oscillations induced by bubble popping”. *Physical Review E* **91**(3), 036401 (2015).
- [59] Salem, I. B., Guillermic, R.-M., Sample, C., Leroy, V., Saint-Jalmes, A., and Dollet, B. Propagation of ultrasound in aqueous foams : bubble size dependence and resonance effects. *Soft Matter* **9**(4), 1194–1202 (2013).

- [60] Goldfarb, I., Schreiber, I., and Vafina, F. Heat transfer effect on sound propagation in foam. *The Journal of the Acoustical Society of America* **92**(5), 2756–2769 (1992).
- [61] Goldfarb, I., Orenbakh, Z., Shreiber, I., and Vafina, F. Sound and weak shock wave propagation in gas-liquid foams. *Shock Waves* **7**(2), 77–88 (1997).
- [62] Lorenceau, E., Louvet, N., Rouyer, F., and Pitois, O. Permeability of aqueous foams. *The European Physical Journal E* **28**(3), 293–304 (2009).
- [63] Allard, J. and Atalla, N. *Propagation of sound in porous media : modelling sound absorbing materials 2e*. John Wiley & Sons, (2009).
- [64] Perrot, C., Panneton, R., and Olny, X. Periodic unit cell reconstruction of porous media : Application to open-cell aluminum foams. *Journal of Applied Physics* **101**(11), 113538 (2007).
- [65] Perrot, C., Chevillotte, F., Hoang, M. T., Bonnet, G., Bécot, F.-X., Gautron, L., and Duval, A. Microstructure, transport, and acoustic properties of open-cell foam samples : Experiments and three-dimensional numerical simulations. *Journal of Applied Physics* **111**(1), 014911 (2012).
- [66] Kann, K. and Kislitsyn, A. A film model of sound propagation in gas-liquid foams : 1. the sound velocity. *Colloid Journal* **65**(1), 26–30 (2003).
- [67] Pierre, J., Guillermic, R.-M., Elias, F., Drenckhan, W., and Leroy, V. Acoustic characterisation of liquid foams with an impedance tube. *The European Physical Journal E* **36**(10), 1–10 (2013).
- [68] Gaillard, T., Honorez, C., Jumeau, M., Elias, F., and Drenckhan, W. A simple technique for the automation of bubble size measurements. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects* **473**, 68–74 (2015).
- [69] Kosgodagan Acharige, S. *Vibration de films de savon*. PhD thesis, Paris 7, (2014).
- [70] Pierre, J., Giraudet, B., Chasle, P., Dollet, B., and Saint-Jalmes, A. Sound propagation in liquid foams : Unraveling the balance between physical and chemical parameters. *Physical Review E* **91**(4), 042311 (2015).
- [71] Golemanov, K., Denkov, N., Tcholakova, S., Vethamuthu, M., and Lips, A. Surfactant mixtures for control of bubble surface mobility in foam studies. *Langmuir* **24**(18), 9956–9961 (2008).
- [72] Dunn, F., Hartmann, W., Campbell, D., Fletcher, N., and Rossing, T. *Springer handbook of acoustics*. Springer, (2015).
- [73] Costa, S., Höhler, R., and Cohen-Addad, S. The coupling between foam viscoelasticity and interfacial rheology. *Soft Matter* **9**(4), 1100–1112 (2013).
- [74] Erpelding, M., Guillermic, R.-M., Dollet, B., Saint-Jalmes, A., and Crassous, J. Investigating acoustic-induced deformations in a foam using multiple light scattering. *Physical Review E* **82**(2), 021409 (2010).
- [75] Wintzenrieth, F., Cohen-Addad, S., Le Merrer, M., and Höhler, R. Laser-speckle-visibility acoustic spectroscopy in soft turbid media. *Physical Review E* **89**(1), 012308 (2014).

- [76] Pierre, J., Elias, F., and Leroy, V. A technique for measuring velocity and attenuation of ultrasound in liquid foams. *Ultrasonics* **53**(2), 622–629 (2013).
- [77] Pierre, J., Dollet, B., and Leroy, V. Resonant acoustic propagation and negative density in liquid foams. *Physical review letters* **112**(14), 148307 (2014).
- [78] Wintzenrieth, F. *Propagation du Son et Diffusion de la Lumière dans les mousses*. PhD thesis, Paris 6, (2015).
- [79] Bracewell, R. et al. Analogues of an ionized medium. *Wireless Engineer* **31**(12), 320–326 (1954).
- [80] Lee, S. H., Park, C. M., Seo, Y. M., Wang, Z. G., and Kim, C. K. Acoustic metamaterial with negative density. *Physics Letters A* **373**(48), 4464–4469 (2009).
- [81] Lee, S. H., Park, C. M., Seo, Y. M., Wang, Z. G., and Kim, C. K. Composite acoustic medium with simultaneously negative density and modulus. *Physical review letters* **104**(5), 054301 (2010).
- [82] Acharige, S. K., Elias, F., and Derec, C. Soap film vibration : origin of the dissipation. *Soft matter* **10**(41), 8341–8348 (2014).
- [83] Princen, H. Rheology of foams and highly concentrated emulsions. ii. experimental study of the yield stress and wall effects for concentrated oil-in-water emulsions. *Journal of colloid and interface science* **105**(1), 150–171 (1985).
- [84] Mei, J., Ma, G., Yang, M., Yang, Z., Wen, W., and Sheng, P. Dark acoustic metamaterials as super absorbers for low-frequency sound. *Nature Communications* **3**, 756 (2012).
- [85] Epstein, P. S. and Carhart, R. R. The absorption of sound in suspensions and emulsions. i. water fog in air. *The Journal of the Acoustical Society of America* **25**(3), 553–565 (1953).
- [86] Allegra, J. and Hawley, S. Attenuation of sound in suspensions and emulsions : theory and experiments. *The Journal of the Acoustical Society of America* **51**(5B), 1545–1564 (1972).
- [87] Sheng, P. *Introduction to wave scattering, localization and mesoscopic phenomena*, volume 88. Springer Science & Business Media, (2006).
- [88] Soukoulis, C., Datta, S., and Economou, E. Propagation of classical waves in random media. *Physical Review B* **49**(6), 3800 (1994).
- [89] Li, J. and Chan, C. Double-negative acoustic metamaterial. *Physical Review E* **70**(5), 055602 (2004).
- [90] Devaud, M., Hocquet, T., Bacri, J.-C., and Leroy, V. The Minnaert bubble : an acoustic approach. *European Journal of Physics* **29**(6), 1263 (2008).
- [91] Prosperetti, A. Thermal effects and damping mechanisms in the forced radial oscillations of gas bubbles in liquids. *The Journal of the Acoustical Society of America* **61**(1), 17–27 (1977).
- [92] Alekseev, V. N. and Rybak, S. A. Gas bubble oscillations in elastic media. *Acoustical Physics* **45**, 535–540 (1999).



- [93] Liang, B. and Cheng, J.-c. Acoustic localization in weakly compressible elastic media containing random air bubbles. *Physical Review E* **75**(1), 016605 (2007).
- [94] Strasberg, M. The pulsation frequency of nonspherical gas bubbles in liquids. *The Journal of the Acoustical Society of America* **25**(3), 536–537 (1953).
- [95] Leroy, V. *Bulles d'air dans l'eau : couplage d'oscillateurs harmoniques et excitation paramétrique*. PhD thesis, Université Paris-Diderot-Paris VII, (2004).
- [96] Calvo, D. C., Thangawng, A. L., and Layman, C. N. Low-frequency resonance of an oblate spheroidal cavity in a soft elastic medium. *The Journal of the Acoustical Society of America* **132**(1), EL1–EL7 (2012).
- [97] L. Landau, E. L. *Physique théorique, tome 6, mécanique des fluides*. Mir, (1989).
- [98] Fikioris, J. and Waterman, P. Multiple scattering of waves. ii. “hole corrections” in the scalar case. *Journal of Mathematical Physics* **5**(10), 1413–1420 (1964).
- [99] Lloyd, P. and Berry, M. Wave propagation through an assembly of spheres : Iv. relations between different multiple scattering theories. *Proceedings of the Physical Society* **91**(3), 678 (1967).

